



KfK 3426  
Dezember 1982

# **Modelltheoretische Untersuchungen an Brennstäben des Schnellen Brutreaktors und Anwendung auf spezielle Sicherheitsexperimente**

T. Preußer  
Projekt Schneller Brüter  
Fachgebiet Reaktortechnik der  
Technischen Hochschule Darmstadt

**Kernforschungszentrum Karlsruhe**



KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Projekt Schneller Brüter

KfK 3426

Modelltheoretische Untersuchungen an Brennstäben  
des Schnellen Brutreaktors und Anwendung auf  
spezielle Sicherheitsexperimente

Timm Preußer

Fachgebiet Reaktortechnik der TH Darmstadt

Vom Fachbereich Maschinenbau der Technischen  
Hochschule Darmstadt genehmigte Dissertation D 17

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

Als Manuskript vervielfältigt  
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH  
ISSN 0303-4003

## Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit liefert einen Beitrag zur Weiterentwicklung der Brennstab-Modelltheorie zur Beschreibung transienter Belastungen bis hin zu sehr schnellen Störfällen. In drei aufeinander folgenden Abschnitten wird der Stand des Wissens kritisch diskutiert, werden Weiterentwicklungen vorgestellt und schließlich Anwendungsmöglichkeiten am Beispiel der Analyse von Experimenten aufgezeigt.

Im Rahmen der Weiterentwicklungen werden eine konsistente Zusammenstellung aller relevanten Materialdaten zur Beschreibung von UC- und (U,Pu)C-Brennstoffen vorgestellt sowie Modelle zum Spaltgasverhalten und zum Schwellen abgeleitet. Es wird eine Literatur-Untersuchung zur Umstrukturierung von Oxid-Brennstoffen durchgeführt und insbesondere im Hinblick auf transiente Rechnungen aufgezeigt, welche Modelle hier anwendbar sind.

Zur Berechnung transienter Temperaturverläufe in Brennstoff, Hüllrohr, Kühlmittel und umgebender Struktur wird eine neue Methode vorgestellt, die auf einer Ansatzfunktion vom Typ der stationären Lösung basiert. Explizite, implizite und zeitzentrierte Lösungen sind möglich. Zur Behandlung spezieller Störfallexperiment-Anordnungen wird ein parametrisches Modell zur Beschreibung von Kühlkanalblockaden entwickelt, mit dessen Hilfe die transienten Temperaturverläufe in einem durch besondere Einwirkungen gestörten Kühlmittelstrom berechnet werden können.

Die entwickelten Methoden werden auf Störfallexperimente zum Schnellen Brüter angewendet. Es werden Experimente aus der Serie Mol 7c analysiert, wobei sowohl Kühlkanal- als auch Brennstabgeschehen untersucht wird. Es wird gezeigt, daß die Kühlkanalblockade während Vorbestrahlung und Transiente erhebliche Auswirkungen auf das Stabgeschehen hat; es ergeben

sich dabei gute Übereinstimmungen mit den experimentellen Befunden.

Die entwickelten Modelle zum Karbidstab werden auf stationäre und transiente Experimente angewendet. Insbesondere wird das unterschiedliche Verhalten von Oxid- und Karbidbrennstoff während Leistungsexkursions-Störfällen untersucht. Der Autor kommt hierbei zu dem Schluß, daß das Karbidstabkonzept gegenüber dem Oxidstab zumindest als gleichwertig eingestuft werden muß.

Investigations by Model Theory of Fast Breeder Reactor Fuel  
Pins and Application to Special Safety Experiments.

Summary

This paper makes a contribution to the development of the fuel rod model theory for describing transient loads up to and including very fast accidents. In three successive sections the state of knowledge is subjected to critical discussion, improvements are presented and, finally, possibilities of application indicated by the example of experiment analysis.

Within the framework of further developments a consistent compilation is given of all relevant material data for describing UC and (U,Pu)C-fuels and models are derived on the fission gas behavior and on swelling. A literature search is made on the restructuring of oxide fuels and it is shown above all with respect to transient calculations which models can be employed here.

For calculating transient temperature developments in the fuel, cladding tube, coolant and surrounding structure a new method is presented which is based on an ansatz function of the steady-state solution type. Explicit, implicit and time-centered solutions are possible. For dealing with special experimental assemblies simulating accidents a parameter model is developed which allows to describe coolant channel blockages and with the help of which the transient temperature developments in a coolant flow disturbed by special influences can be calculated.

The methods developed are applied to experiments simulating accidents in a fast breeder reactor. Experiments from the Mol-7c series are analyzed including an investigation of both the events taking place in the coolant channel and in the fuel rod. It is shown that the coolant channel blockage during preirradiation and the transient has considerable

impacts on the events in the rod; good agreements are reached with the experimental findings.

The models developed on the carbide rod are applied to steady-state and transient experiments. Above all the differences in the behavior of oxide and carbide fuels during accidents involving power excursions are studied. The author reaches the conclusion that the concept of the carbide rod, compared with the concept of the oxide rod, must be considered to be at least equal in value.



	<u>Inhaltsverzeichnis</u>	<u>Seite</u>
1.	Einleitung	1
2.	Analyse von Stand und Problematik der Brennstabmodelltheorie	4
2.1	Integrale Brennstabanalyse	4
2.2	Zur Problematik der Anwendungsbereiche von Materialdaten und Modellen	10
3.	Entwicklung neuer Methoden und Modelle	14
3.1	Transiente Temperaturberechnung	16
3.1.1	Radiale Behandlung	21
3.1.2	Axiale Behandlung	27
3.1.3	Phasenwechsel	30
3.1.4	Numerische Methode	32
3.2	Modell zur Berücksichtigung einer Kühlkanalblockade	36
3.3	Zur Umstrukturierung von Brennstoffen	43
3.3.1	Poren-Einflüsse	44
3.3.2	Gefüge-Änderungen	57
3.4	Zusammenstellung von Daten und Modellen zum Karbidbrennstab	63
3.4.1	Mechanische Eigenschaften	64
3.4.2	Thermische Eigenschaften	70
3.4.3	Bestrahlungsverhalten	79
3.4.4	Diskussion	99

		<u>Seite</u>
4.	Rechnungen und Interpretationen	101
4.1	Transiente Untersuchungen am Oxidstab: Analyse der Mol 7c-Sicherheitsexperimente	101
4.2	Untersuchungen am Karbidstab	118
4.2.1	Stationäre Rechnungen am Karbidstab	118
4.2.2	Transiente Rechnungen am Karbidstab	127
4.3	Gegenüberstellung des Oxid- und Karbidstab- Konzeptes im Rahmen von Störfalltransienten	131
5.	Ausblick	145
6.	Literatur	147

## 1. Einleitung

In der Diskussion um den Schnellen Brüter nehmen Sicherheitsfragen einen breiten Raum ein. Dabei werden wegen der eventuell schwerwiegenden Folgen auch Störfälle mit extrem kleiner Eintrittswahrscheinlichkeit - sogenannte hypothetische Störfälle - betrachtet. Diese Störfälle werden sowohl theoretisch als auch experimentell untersucht, um nachzuweisen, daß das damit verbundene Risiko zumutbar gering ist. Tabelle 1 (aus /1/) zeigt die aktuelle gesamteuropäische Testmatrix, die im wesentlichen Fragen lokaler Kühlmittelstörungen, Leistungsexkursionen, Kühlmittelverlust-Störfälle oder Kombinationen hieraus behandelt. Unabhängig vom auslösenden Faktor nehmen grundsätzlich alle genannten Störfälle direkten Einfluß auf die Brennstäbe, und deren Antwortverhalten ist von entscheidender Bedeutung für die Sicherheit.

Neben der Analyse von Gesamtcore-Szenarien hat deshalb die modelltheoretische Behandlung von Brennstäben hohe Priorität, und entsprechende Untersuchungen werden seit einer Reihe von Jahren unter der Überschrift "Brennstab-Strukturanalyse" durchgeführt. Hierunter wird die modellmäßige Behandlung des Systems Brennstoff-Hüllrohr-Kühlmittel verstanden. In der Vergangenheit zielten solche Untersuchungen überwiegend auf das Stabverhalten unter normalen Betriebsbedingungen; eine ausführliche Darstellung über Stand und Probleme der Brennstab-Strukturanalyse wurde 1979 von Laßmann /2/ gegeben, grundlegende Aspekte 1976 von Olander /3/ ausführlich dargestellt.

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, die Methoden der Brennstabmodelltheorie zu erweitern und eine Anwendung auf schnellablaufende Störfälle unter Berücksichtigung spezieller Aspekte (Kühlkanalblockade) und unter Einbeziehung von fortgeschrittenen Brennstabkonzepten zu ermöglichen; hierunter

	VIPER	CABRI	BR2 (MOL 7C)	SCARABEE (1st phase)	SCARABEE N (2nd phase)	DFR	SILENE	HFR
Site	Aldermaston	Cadarache	MOL	Cadarache	Cadarache	Dounreay	Valduc	Petten
Organisation	UKAEA	CEA and KfK	KfK and CEN Belge	CEA	CEA	UKAEA	CEA	ECN
Type of reactor	Fast – partially moderated	Swimming pool Oxide fuel	Pressurised water	Swimming pool Plate type fuel	Swimming pool Plate type fuel	Fast	Homogeneous – fast partially moderated	Swimming pool
Mode of operation	Pulsed	Pulsed	Continuous	Limited steady state	Limited steady state	Continuous	Pulsed	Continuous
Experimental arrangement	Capsule	Loop	Loop/capsule	Loop	Loop	Trefoils and mini sub-assemblies	Capsule	Capsule
Reactor cooling	None	Water-limited supply	Water-cooled circuit	Water-limited supply	Water-limited supply	NaK	No	Water-closed circuit
Neutron conversion	Thermalised beam from pulsed fast reactor	No	No	No	Yes		No	No
Hodoscope	No	Yes	No	No	No	No	No	No
Maximum number of pins in bundle tested	Small samples	1	37	7	37	19		1
Pin location		Locating studs	Grids	Wire-wrapped	Wire-wrapped	Grids		Locating studs
Maximum fuel length in mm		800	400	600	600	510		200
Power excursion tests	Yes	Yes	No	Yes (slow)	Yes (slow)	Yes (slow)	Yes	Yes
Flow transient tests	No	Yes	Yes	Yes	Yes	Yes		Simulated
Fuel conditions	Irradiated	Irradiated	Irradiated	Non-irradiated	Irradiated	Irradiated	Irradiated	Irradiated
Timescale	1973 onward	1978 onward		1971–4	1980 onward	1976–7	1977 onward	1970 onward
Main objective	Microscopic behaviour of irradiated fuel	Fuel failure in whole core accidents	Local blockage development	Fuel and coolant behaviour in local blockage conditions		Local blockage development	Transient fission gas release – irradiated fuel EOS	Fuel failure in LOC TOP and prolonged overheating

I  
2  
I

Tabelle 1: Gesamteuropäische Testmatrix zum LMFBR (entnommen aus /1/).

werden alle nichtoxidischen Uran- und Plutonium-Verbindungen verstanden, insbesondere Karbide und Nitride. Die Arbeit orientiert sich damit also an den Gegebenheiten des schnellen Brutreaktors (SNR = Schneller Natriumgekühlter Reaktor, LMFBR = Liquid Metal Fast Breeder Reactor). Seine Betriebsbedingungen weichen deutlich von denen der thermischen Leichtwasserreaktoren ab, wobei im Vorgriff auf die folgenden Kapitel insbesondere andere Geometrien, höhere Leistung, höhere Brennstoff-, Hüllrohr- und Kühlmitteltemperaturen, härteres Neutronenspektrum, andere Materialien (U,Pu-Mischoxid, Stahl-Hüllrohre, Na-Kühlung) und höhere erzielbare Abbrände als relevant angegeben werden müssen. Auch das Verhalten während eines Störfalles ist deutlich anders als beim thermischen Reaktor: Kühlmittelverlust (LOF = Loss of Fluid) führt zur Erhöhung der Reaktivität und kann so in einen Leistungsexkursionsstörfall einmünden (LOFTOP = Loss of Fluid driven Transient Overpower, TUCOP = Transient Undercooling Overpower); Leistungsexkursionen (TOP) laufen zudem schneller ab als im thermischen Reaktor. Zwangsläufig müssen sich deshalb auch die zur Beschreibung entwickelten Modelle teilweise erheblich unterscheiden.

Im ersten Teil der Arbeit soll zunächst der Begriff "Brennstabmodelltheorie" kritisch analysiert werden und auf die damit unmittelbar zusammenhängenden Probleme eingegangen werden. Aus dem Vergleich mit den Ansprüchen, die jüngste Experimente durch ihre Kompliziertheit für modellmäßige Voraus- und Nachrechnungen stellen, und insbesondere unter dem Aspekt der zwingend notwendigen Berücksichtigung des nichtstationären Materialverhaltens ergeben sich sodann Anforderungsprofile an das zu benutzende Rechenprogramm. Hierauf aufbauend werden im zweiten Teil der Arbeit die Untersuchungsmethoden und das ingenieurmäßige Handwerkszeug dazu fortentwickelt und eigene Beiträge zum Rechenprogramm URANUS dargestellt. Im dritten Teil werden dann typische Verhaltensweisen von Brennstäben unter Störfallbedingungen berechnet und zur Interpretation von Störfallexperimenten herangezogen. Insbesondere werden vergleichende Untersuchungen zu Leistungsexkursions-Störfällen für Oxid- und Karbid-Brennstäbe durchgeführt. Damit grenzt sich dieser Beitrag gegen andere Arbeiten am Brennstabprogramm URANUS /z.B. 4, 5/ deutlich ab und stellt einen neuen, eigenen Beitrag zu dessen Entwicklung dar.

## 2. Analyse von Stand und Problematik der Brennstabmodelltheorie

### 2.1 Integrale Brennstabanalyse

Unter Brennstabmodelltheorie (oder synonym Brennstab-Struktur-analyse) versteht man die mechanisch/thermische Beschreibung von Brennstäben aus Kernreaktoren unter besonderer Berücksichtigung bestrahlungsinduzierter und chemischer Einflüsse. Wegen der prinzipiell ähnlichen Form von Brennstäben brauchen hierbei zunächst keine Einschränkungen auf bestimmte Reaktortypen vorgenommen zu werden. Allerdings ergeben sich Unterschiede schon deshalb, weil Werkstoffe und Belastungen in den einzelnen Reaktortypen verschieden sind, so daß auch die Modelle zum Teil unterschiedlich bis völlig verschieden formuliert werden müssen.

Wegen der Vielzahl zu berücksichtigender Effekte und ihrer komplexen gegenseitigen Abhängigkeiten kann eine detaillierte Beschreibung des Brennstabgeschehens nur mit Hilfe von Rechenprogrammen vorgenommen werden. Wichtigste Kenngröße für die Beanspruchung eines Brennstabes ist die Temperaturverteilung im Stabinnern. Sie wird beeinflußt von der örtlichen Leistungsverteilung, den Wärmeströmen in Brennstoff und Hüllrohr, sowie den Randbedingungen beim Wärmeübergang ans Kühlmittel und beim Wärmeübergang im Spalt. Letztgenannte Größe ist von entscheidender Bedeutung, da sie als Bindeglied in der Rückkopplungskette der verschiedensten physikalischen Effekte steht, und weil sie empfindlich und nichtlinear auf den jeweiligen Lastzustand reagiert (vgl. auch /6/). Es wird unmittelbar klar, daß eine Lösung des zu behandelnden Problems nur auf iterativem Wege oder durch eine inkrementelle Betrachtung zu erhalten sein wird. Erschwerend kommt hinzu, daß typische Werkstoffgrößen wie Wärmeleitfähigkeit, Elastizitätsmodul, Diffusionskonstante in der Regel stark von der Temperatur abhängen, so daß eine radial diskrete Behandlung notwendig ist. Wegen der Ortsabhängigkeit der Leistungsverteilung und der Kühlmitteltemperatur muß auch eine axiale Diskretisierung vorgenommen werden. Unvermeidliche azimutale Einflüsse (exzentrische Tablettenlage im Hüllrohr, Ovalitäten, gegenseitige Beeinflussung der Stäbe) erfordern

unter Umständen sogar eine Diskretisierung in Umfangsrichtung. Schließlich ist als vierter Parameter die Zeit zu nennen, die wegen der sich ändernden Lasten (Leistung, Druck) und wegen der resultierenden Beanspruchungen (Kriechen der Werkstoffe, abbrandabhängiges Schwellen, Umstrukturieren, Gasfreisetzen) ebenfalls in diskrete Schritte unterteilt werden muß.

Damit ist knapp ein System erheblicher gegenseitiger Abhängigkeiten umrissen, das ohne weiteres gar nicht behandelbar ist: "Eine vollständige und physikalisch exakte Brennstab-Strukturanalyse, die in gleicher Weise die dreidimensionale Struktur und das komplexe Materialverhalten berücksichtigt, liegt außerhalb der heute gegebenen Möglichkeiten" /2/.

In der Vergangenheit wurde deshalb eine Philosophie entwickelt, die die verschiedenen Ansätze als komplementär in ein Gesamtkonzept eingliederte: Ausgehend von rein thermischen Untersuchungen (vgl. /7/) über Einbeziehung mechanisch eindimensionalen Verhaltens (vgl. /8/) führte ein Weg zur integralen Beschreibung des gesamten Stabes unter Berücksichtigung möglichst detaillierter physikalischer Modelle (vgl. z.B. /4, 9,10/). Als ergänzende Methode werden mechanisch-mehrdimensionale Untersuchungen, in der Regel nach der Finit-Element-Methode, an lokal interessanten Punkten (Abstandshalter, Endstopfen) durchgeführt (vgl. z.B. /11/), wobei bei neueren Codes auch detaillierte physikalische Modell eingesetzt werden (vgl. z.B. /12/).

Beide Wege haben, besonders bei der Behandlung schwerer Störfälle, nichts von ihrer Aktualität verloren. In der Praxis lassen sich die mit der ersten Methode erzielten Ergebnisse häufig als Anfangs- und Randbedingungen für die zweite verwenden. Die Beschreibung des integralen Verhaltens des Stabes mit im wesentlichen eindimensionalen Codes ist eine sehr wesentliche Voraussetzung bei der Störfallanalyse; Fragen des lokalen Stabversagens unter räumlich- und zeitlich nichtkonstanten

Bedingungen können jedoch nur mit mechanisch mehrdimensionalen Modellen detailliert beschrieben werden.

Neben Ansätzen, die den Stab oder zumindest Ausschnitte davon unter Berücksichtigung einer Vielzahl einflußnehmender Parameter beschreiben, wurden Modelle zur Beschreibung von Detailproblemen etabliert. Hier sind vor allem im problematischen Bereich des Gasverhaltens praktisch mikroskopische Bilanzen entwickelt worden /13,14,15/. Sie dienen weniger der ingenieurmäßigen Auslegung von Brennstäben, sondern sind ein Hilfsmittel zum Verständnis von noch offenen physikalischen Problemen.

Auch im Bereich der Thermohydraulik sind Spezialprogramme entwickelt worden, die unter simplifizierter Annahme des Brennstabgeschehens (im wesentlichen Berücksichtigung von Wärmezeugung, Wärmekapazität, Wärmestrom und Geometrie) mehrdimensionale Analysen des ein- und mehrphasigen Kühlmittelstromes erlauben (z.B. TIGER /16/, SABRE /17/). Detailmodelle existieren jedoch auch für andere Problemkreise, z.B. für die Behandlung gerissener Brennstoff-Tabletten /18/ oder zur Analyse der jodbeeinflussten Spannungsrißkorrosion /19/, um nur zwei Beispiele zu nennen.

Angestrebtes Ziel ist es, solche Modelle - zumindest ihre wesentlichen Ansätze - in allgemeinere Brennstabcodes zu integrieren. Wenngleich dies auch in einzelnen Fällen gut durchführbar ist (vgl. /20/: Kopplung des STRECK-Modelles /18/ zur Rißmechanik und Plastizität an den Code FINEL/ZIDRIG; vgl./21/: Kopplung der Spaltgasmodelle LANGZEIT-KURZZEIT /14/ an URANUS), so bleiben in der Regel erhebliche Probleme der Nicht-Kompatibilität und die stetige Gefahr, einen Code zu "überladen", d.h. ihn zu kompliziert zu machen. In vielen Fällen dürfte der Weg, das Ergebnis einer Rechnung als Randbedingung für eine zweite zu verwenden, der einzig gangbare sein.



Neben den integralen Codes, den mehrdimensionalen Ansätzen und den Detailmodellen gibt es als vierte große Gruppe den Bereich der Sicherheits-Codes. Sie sind konsequent auf spezielle Störfallabläufe hin konzipiert und berücksichtigen die in diesem Rahmen wesentlichen Effekte, in der Regel also nur Vorgänge mit kleinen Zeitkonstanten. Solche Codes - als Beispiel seien FRAP-T /22/ und LAFM /23/ genannt - benötigen als Anfangswert den Zustand des Brennstabes vor Beginn der eigentlichen Störfallbetrachtung, so daß sie - wie auch die Detailmodelle - allein nicht ohne weiteres einsetzbar sind.

Vom ingenieurmäßigen Standpunkt bleiben deshalb die integralen Codes im Vordergrund des Interesses. Sie erlauben bei entsprechender Ertüchtigung die Analyse von stationären und transienten Abläufen unter Berücksichtigung des gesamten Stabverhaltens einschließlich der Kühlmitteldynamik und sonstiger Randbedingungen (Struktur außerhalb des Kühlkanals); bei entsprechend flexiblem Aufbau können darüberhinaus schwerpunktmäßig Detailmodelle inkorporiert werden.

Der derzeitige Stand, vor allem auch unter Einbeziehung der schnellablaufenden Störfälle, kann - wenn auch noch nicht in zusammenfassender Wertung - Beiträgen zu internationalen Konferenzen entnommen werden, die die Fragen des Brennstabverhaltens teilweise zum alleinigen Thema haben (vgl. IAEA Specialists' Meeting on Water Reactor Fuel Element Performance, 1978 /24/, 1980 /25/, 1982 /26/; OECD-CSNI Specialists' Meeting on Safety Aspects of Fuel Behaviour, 1980 /27/; ANS-ENS Topical Meeting on Reactor Safety Aspects of Fuel Behavior, 1981 /28/.

Integrale Stabrechenprogramme existieren - erste Anfänge mitgerechnet - seit etwa 15 Jahren. In dieser Zeit hat eine beachtliche Entwicklung stattgefunden, so daß man den heutigen Stand wie folgt beschreiben kann:

- Quasi-Zweidimensionale mechanische Behandlung durch Superposition radialer und axialer Ansätze
- Berücksichtigung des nichtlinearen Werkstoffverhaltens
- Berücksichtigung großer Verformungen (Theorie 2. Ordnung)
- Instationäre Temperaturberechnung
- Instationäre Modelle
- Kühlkanaldynamik
- Rissmechanik im Brennstoff
- Berücksichtigung axialer Reibkräfte
- Systeme von Peripherieprogrammen zur Eingabe/Ergebnisaufbereitung und zum Testen.

In der Regel liegen jeweils mehrere Versionen eines Programmsystems vor, um unterschiedlichen Ansprüchen (Reaktortyp, Betriebsweise) zu genügen; zum Teil führen auch mehrere alternative Pfade durch ein Programm, das dann die verschiedenen Versionen quasi auf Knopfdruck zur Verfügung stellt.

Trotz dieser Fortschritte sind damit jedoch noch nicht alle Voraussetzungen geschaffen, tatsächlich auch Störfalluntersuchungen beliebiger Art durchzuführen. Dazu müssen eine Reihe weiterer Bedingungen erfüllt sein:

- Behandlung von verdampfendem Kühlmittel
- Behandlung von schmelzendem Brennstoff
- Behandlung von Wärmekapazitäten außerhalb des Kühlkanals (Struktur)
- Behandlung von Vorbestrahlungsphasen
- Numerisch sichere Methode auch bei extrem kleinen Zeitschritten im Millisekunden-Bereich
- Schnelle Algorithmen, automatische Zeitschrittsteuerung.

Im Rahmen dieser Arbeit soll am Beispiel der Fortentwicklung des URANUS-Codes gezeigt werden, wie diese Forderungen in ein Gesamtkonzept eingebracht werden können.

Dabei wurden in Erweiterung obiger Anforderungen noch die etwas spezielleren Punkte

- Behandlung von Kühlkanalblockaden
- Behandlung von fortgeschrittenen Brennstabkonzepten

aufgegriffen und entsprechende Modelle entwickelt. Insbesondere durch die Möglichkeit, Störfalluntersuchungen auch am Karbidstab durchführen zu können, ergibt sich ein weiterer Anwendungsbereich. Allerdings kann das Materialverhalten während schnellablaufenden Laständerungen noch längst nicht als umfassend geklärt angesehen werden. Entsprechende Experimente sind mit erheblichem Aufwand verbunden und die Streuung der bisher erhaltenen Einzelergebnisse ist beträchtlich. Die sich aus dieser Problematik ergebenden Einschränkungen werden deshalb in Kapitel 2.2 gesondert dargestellt.

## 2.2 Zur Problematik der Anwendungsbereiche von Material- daten und Modellen

An dieser Stelle soll zunächst der für die weiteren Betrachtungen erforderliche Begriff der "Transiente" näher erläutert werden. Die direkte Übersetzung aus dem Englischen führt zu "instationärem Vorgang". Die vorstehenden Betrachtungen haben gezeigt, daß der Betrieb eines Brennstabes immer zu zeitabhängigen Vorgängen führt, so daß eine Klärung der Begriffe sehr notwendig ist.

Ein Reaktor wird üblicherweise mit konstanter Leistung im "stationären Betrieb" gefahren; langsam ablaufende Leistungsänderungen (etwa im Stundenbereich) während An- und Abfahren oder bei Laständerungen werden als "Betriebstransienten" bezeichnet. Tritt während eines Störfalles ein Ungleichgewicht zwischen erzeugter und abgeführter Energie auf (z.B. infolge Reaktivitätserhöhung oder Kühlungsausfall als Folge eines Kühlmittelverlustes), spricht man von einer "Störfalltransienten". Instationäre Vorgänge während eines eventuellen Kühlmittelverlustes werden häufig nur als "Kühlmittelverluststörfall" bezeichnet. Solche Leistungserhöhungen oder Kühlmittelverluste können - je nach Art des Störfalles - im Millisekunden- bis Stundenbereich ablaufen. Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Abläufe läßt sich jedoch dennoch gut unterscheiden in

- quasi-stationären Betrieb
- Störfalltransiente,

wenn man als Maß diejenige Zeit annimmt, die der Brennstoff zum Erreichen der Sättigungstemperatur bei konstanter Last benötigt (etwa 30 sec.).

Für die Modelltheorie scheiden sich damit zwei Wege: "quasi-stationäre Rechenprogramme" erlauben die Beschreibung von stationärem Betrieb, Betriebstransienten und langsam ablaufenden Störfällen; "transiente Codes" darüberhinaus die Behandlung schnellablaufender Störfälle. In der Regel spricht man schon dann von einem "transienten Code", wenn zumindest die instationäre Temperaturberechnung vorhanden ist, obwohl gerade für

Störfallbetrachtungen auch andere Effekte (transiente Gasfreisetzung, transientes Schwellen usw.) extrem wichtig sind. Da ein in allen Punkten transienter Code heute jedoch noch nicht realisiert ist (und sich ohne weiteres auch nicht wird realisieren lassen), wird diese Definition in der Folge weiter verwendet werden. Soweit möglich, sollen physikalische Effekte jedoch durch die Begriffe "Langzeit-" oder "Kurzzeit-Effekte" charakterisiert werden. Ein Langzeit-Effekt ist z.B. das Brennstoffschwellen infolge Einlagerung fester Spaltprodukte; ein Kurzeffekt wäre die transiente Spaltgasfreisetzung durch Aufreißen des Brennstoffes während einer Störfalltransiente.

Die numerische Behandlung zeitabhängiger Abläufe stellt aber nur einen Teil des Problemes dar. Die notwendige Voraussetzung, daß das zu beschreibende Materialverhalten auch tatsächlich bekannt ist, ist nicht in allen Fällen gegeben. Zwangsläufig am weitesten vorangeschritten ist man heute bei einfachen Materialdaten (z.B. Elastizitätsmodul) für Standard-Materialien (z.B.  $\text{UO}_2$ ) und typische Betriebsbedingungen (z.B. unterhalb der halben Schmelztemperatur). Damit ist die modellmäßige Beschreibung z.B. von Leichtwasser-Reaktor-Brennstäben unter quasi-stationären Bedingungen gut möglich und wird auch erfolgreich praktiziert. Kenntnisse über das Verhalten von  $\text{UO}_2$ -Standard-Brennstoffen in der Nähe des Schmelzpunktes sind dagegen schon rar, für fortgeschrittene Karbid- oder Nitridverbindungen sogar praktisch nicht vorhanden. Dies führt bei Untersuchung möglicher Störfallabläufe zwangsläufig zu Unsicherheitsbereichen, wovon auch die in der vorliegenden Arbeit vorgestellten Rechnungen (Kap. 4) nicht ausgenommen sind.

Wenn schon die Messung von E-Modul oder Wärmeleitfähigkeit bei sehr hohen Temperaturen experimentell sehr aufwendig wird, so ist die Erfassung von dosisabhängigen (abbrandabhängigen) Effekten in einigen Bereichen heute noch fast unmöglich. Von wenigen Ausnahmen abgesehen kann nämlich das inpile-Verhalten nicht kontinuierlich registriert werden, so daß man auf die "Momentaufnahmen" der Nachbestrahlungsuntersuchungen in "Heissen Zellen" angewiesen ist; damit ist aber gerade die für die Störfalltransienten wichtige Kinetik der interessierenden Vorgänge praktisch verloren gegangen.

Fortgeschrittene experimentelle Methoden erlauben heute in speziellen Testreaktoren (z.B. BR-2 in Mol/Belgien; oder Halden-Reaktor in Halden/Norwegen) die kontinuierliche Messung folgender Effekte:

- Zentraltemperatur (nur bei Hohl-Pellets)
- Oberflächentemperatur der Hülle
- Kühlmitteltemperaturen, Temperaturen von sonstigen Strukturen
- Gasdruck im Stab; Gaszusammensetzung
- axiale Längung von Brennstoffsäulen und Hüllrohr
- radiale Verformung von Brennstoff und Hülle
- Stabversagen über Detektion verzögerter Neutronen (DND-Messung)
- Kühlmitteldurchsatzmessungen

Diese schon im Normalfall unter sehr schwierigen Bedingungen (Zentraltemperaturen  $> 2000^{\circ}\text{C}$ , Stabdurchmesser 6-10 mm, Stabteilung ca. 1.2-1.4 mal Durchmesser) gewonnenen Ergebnisse leisten zur integralen Verifizierung aller Modelle eines Brennstabcodes eine wertvolle Hilfestellung. Für die Erarbeitung von Modellen sind sie dennoch oft unzureichend, denn einerseits können nie alle Effekte gleichzeitig gemessen werden, andererseits geben sie naturgemäß keine Aussagen über radiale Abhängigkeiten, über die Einzelbeiträge der verschiedenen Effekte wie Porenwanderung oder Kornwachstum. Hierüber geben in gewissem Umfang die Nachuntersuchungen Aufschluß, so daß das Stabgeschehen letztlich aus vielen Mosaiksteinchen zusammengesetzt werden muß. Wegen der enormen Kosten von Bestrahlungsexperimenten liegt auf der Hand, daß der überwiegende Teil der Experimente im technisch interessanten Bereich durchgeführt wird. Für typische LWR-Stäbe ( $\text{UO}_2$ , Zircaloy) liegen heute so viele Ergebnisse vor (vgl. /24-27/), daß sich Modelle - seien sie nun physikalisch begründet oder empirisch - für die interessierenden Parameterbereiche gut eichen lassen und die Codes das Bestrahlungsverhalten vernünftig wiedergeben. Durch eigene Arbeiten auf diesem Gebiet wird diese Aussage bestätigt /29, 30/. Grenzen sind jedoch schnell erreicht, wenn

Störfallverläufe zu analysieren sind. Sobald ausgesprochene Kurzzeiteinflüsse zu beschreiben sind, versagen naturgemäß die quasi-stationären Modelle. Hier werden vor allem im Bereich des Gasverhaltens und des transienten Schwellens derzeit mit großem Aufwand Spezial-Codes entwickelt (vgl. /13 bis 15/), deren Anwendung in Kombination mit der integralen Brennstabanalyse jedoch noch sehr problematisch ist. Die schnell fortschreitende Entwicklung, wie man sie am Beispiel /15/ - /15a/ - /15b/ verfolgen kann, macht die Anwendung ebenfalls nicht leichter.

Eine weitere Schwierigkeit liegt bei den in der Regel nur in den für typische Normalbetriebsbedingungen mit Experimenten korrelierten Materialdaten. Hier treten zuweilen falsche Ergebnisse auf, wenn beispielsweise die durch ein Polynom höherer Ordnung dargestellten Daten über den angepaßten Bereich hinaus verwendet werden. Neuere Datenbanksysteme (z.B. MAPLIB /31/) bemühen sich zwar um eine Ausweitung der Gültigkeitsbereiche, doch sind Daten im Bereich des Schmelzpunktes auch heute noch mit hohen Unsicherheiten versehen.

Geradezu diffus wird die Situation jedoch, wenn man den Bereich der fortgeschrittenen Brennstoffe betrachtet. Wegen der restriktiven Politik der europäischen Länder und auch der USA werden Forschungsarbeiten auf diesem Gebiet eher reduziert als verstärkt; verglichen mit oxidischem Brennstoff ist dazu ein Zeitverzug von etwa 15 Jahren zu konstatieren, so daß vergleichsweise wenige Daten für Normalbetriebszustände und fast keine für Transienten vorliegen. Der Stand des Wissens ist - in den überwiegenden Punkten - nach wie vor gut dokumentiert in dem Konferenzbericht "Advanced LMFBR Fuels" aus dem Jahre 1977 /32/. Der Stand der Modelltheorie wird dabei vor allem in einer Arbeit von Billone et al. /33/ sichtbar.

Zusammenfassend muß festgestellt werden, daß das Materialverhalten derzeit noch nicht völlig verstanden ist. Dies muß bei Entwicklung und Anwendung von Codes und bei der Analyse von Experimenten sorgfältig beachtet werden.

### 3. Entwicklung neuer Methoden und Modelle

Im vorangegangenen Kapitel wurden zunächst Ziel und Aufgabe der Brennstabmodelltheorie, Stand heute vorliegender Modelle und die Problematik der Materialdaten dargestellt. Es wurde gezeigt, daß zur Behandlung beliebiger Störfallexperimente unter Berücksichtigung klassischer und fortgeschrittener Brennstabkonzepte noch kein umfassendes System vorliegt. Wegen der Notwendigkeit solcher Systeme beispielsweise für die Analyse spezieller Experimente wie Mol 7c (lokale Kühlkanalverstopfung), die im Rahmen der Reaktorsicherheitsforschung durchgeführt werden, oder zur Klärung von sicherheitsrelevantem unterschiedlichen Verhalten von Karbid-Stäben gegenüber dem Oxid-Konzept, wurde die Erweiterung des URANUS-Codes als wesentlicher Schritt in diese Richtung angegangen. Zwei entscheidende Gründe sprachen dabei für die Fortentwicklung gerade dieses Codes:

- Die URANUS-Konzeption war von vorneherein auf die Möglichkeit transienter Rechnungen abgestellt worden; durch die beliebig zu erweiternden Materialdaten-Schubladen konnten Ergänzungen ohne Störungen der bisherigen Funktionen eingebracht werden. Der Aufwand - verglichen mit der Neu-Entwicklung oder Erweiterung eines weniger flexiblen Systems - war relativ gering bei guten Erfolgsaussichten.
- Der URANUS-Code stand für Entwicklungsarbeiten dem Autor ohne Einschränkungen zur Verfügung; mehrjährige Erfahrung mit dem Code-System konnte sinnvoll eingebracht werden.

Gegenüber der stationären Version /4/ wurden folgende Entwicklungsziele formuliert:

- a) Berechnung der transienten Temperaturfelder im Brennstab (= Lösen der instationären Wärmeleitungsgleichung mit inneren Wärmequellen für nichtkonstante Stoffwerte).



- b) Berechnung der transienten Kühlmitteltemperatur.
- c) Behandlung von Phasenübergängen in Brennstoff, Hülle und Kühlmittel; Bestimmung von Schmelzanteilen und Schmelzradien.
- d) Berücksichtigung der Wärmekapazitäten von Strukturen außerhalb des Kühlkanales.
- e) Berücksichtigung einer Kühlkanalblockade.
- f) Austausch der unbefriedigenden bisherigen Modelle zur Umstrukturierung (Nachsintern, Zentralkanalbildung) gegen ein Porenwandermodell.
- g) Entwicklung einer Karbid-Version mit Materialdaten und Modellen.
- h) Austausch der stationären Modelle für Spaltgasfreisetzung und Schwellen gegen ein transientes Modell, das beide Effekte konsistent beschreibt.
- i) Anpassung des Code-Systems inklusive Ein- und Ausgabe, Zeitschrittsteuerung, Peripherieprogramme usw. an das neue Anforderungsprofil.

Die Entwicklungsziele orientieren sich also in erster Linie an den wenigen im Experiment direkt oder indirekt meßbaren Größen. In zweiter Linie tragen die Entwicklungsziele naturgemäß der Berücksichtigung der experimentellen Randbedingungen Rechnung, wobei Brennstoffart (Oxid oder Karbid), zusätzliche Strukturmaterialien und Kühlkanalbesonderheiten (Blockade) zählen.

Die Entwicklungen zu den Punkten a) bis g) werden im folgenden Kapitel 3 dargestellt, während h) und i) an anderer Stelle (/21/ bzw. /34/) beschrieben sind.

### 3.1 Transiente Temperaturberechnung

Die Berechnung der (transienten) Temperaturverteilung im Brennstab ist, wie schon erwähnt, eines der wichtigsten Ziele der Brennstab-Modelltheorie.

In diesem Abschnitt soll eine Methode zur Behandlung der Temperaturberechnung in Brennstoff, Hülle, Kühlmittel und umgebender Struktur (z.B. Bestrahlungskapsel) hergeleitet werden, die speziell auf die Bedürfnisse der quasi-zweidimensionalen Brennstab-Modelltheorie abgestellt ist. Ihre Entwicklung wurde in enger Zusammenarbeit mit K. Laßmann und aufbauend auf dessen früheren Arbeiten /35, 36/ durchgeführt.

Abb. 1 zeigt die zu berücksichtigende Geometrie sowie einen qualitativen Temperaturverlauf. Die Methode soll folgende Anforderungen erfüllen:

- a) Berechnung der aktuellen Temperatur  $\vartheta(r, t + \Delta t)$  als Funktion der Temperatur zur Zeit  $t$ , der Leistungsgeschichte während des Zeitschrittes  $\Delta t$ , der Materialeigenschaften und der Randbedingungen.
- b) Berücksichtigung der temperaturabhängigen Materialgesetze, wodurch eine erste Nichtlinearität eingeführt wird.
- c) Verknüpfung der Temperaturberechnung mit der mechanischen Behandlung (zweite Nichtlinearität).
- d) Behandlung typischer Unfall-Szenarien wie TOP, LOF, Kühlkanalblockade; also Berücksichtigung von Phasenwechseln (Schmelzen des Brennstabes, wandernde Schmelzfronten (Stefan-Problem); Verdampfen des Kühlmittels) und Kühlkanalverzweigungen.

- e) Da die Temperaturberechnung nur einen Teil der Brennstab-Strukturanalyse darstellt, muß Wert auf einen schnellen und numerisch stabilen Algorithmus gelegt werden. Außerdem müssen Möglichkeiten zur automatischen Zeitschrittsteuerung enthalten sein, die beispielsweise auf schnelle Änderungen der Randbedingungen reagiert.

Prinzipiell stehen unterschiedliche erprobte Ansätze zur Verfügung, um solche Probleme zu behandeln. Neben schon klassischen Differenzverfahren (vgl. /37/) können Finit-Element-Methoden /38/ oder auch iterative Verfahren (z.B. /35/) benutzt werden. Daneben werden auch Randintegralverfahren (BEM, Boundary Element Method) /39/ vorgeschlagen.

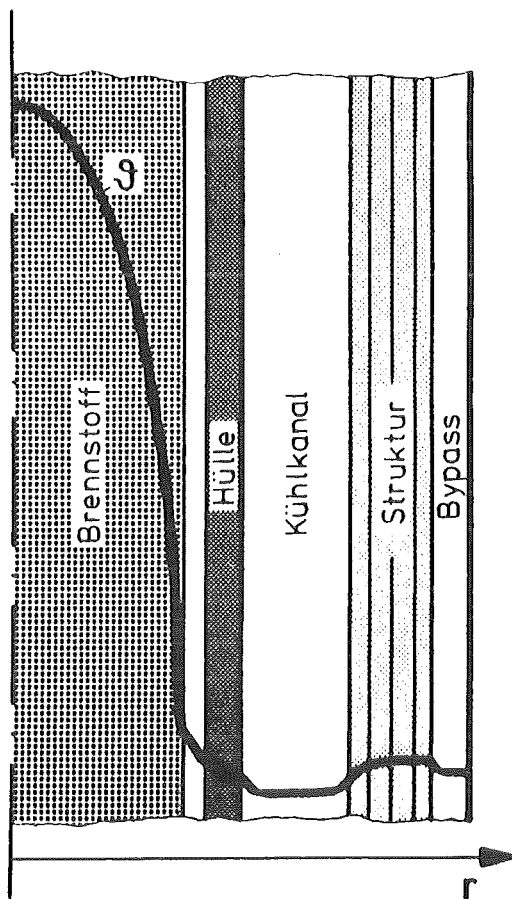


Abb. 1: Geometrie-einteilung: Brennstoff, Hülle, Kühlmittel, Struktur; qualitativer Temperaturverlauf mit Leistungserzeugung in Brennstoff und Struktur (z.B.  $\gamma$ -Heizung).

Das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Verfahren basiert auf einer Ansatzfunktion vom Typ der stationären Lösung nach Laßmann /35/. Anstelle der vorgeschlagenen iterativen Lösung wird ein explizit-implizites Verfahren angewandt; als Ergebnis zeigt sich, daß der resultierende Algorithmus bekannte finite Differenzen- und finite Elementschemata als Spezialfälle enthält. Im Rahmen einer anderen Arbeit /40/ wurde dies näher ausgeführt und gezeigt, daß sich durch Wahl geeigneter räumlicher Wichtungsfaktoren eine optimale Kombination zwischen FEM und FD-Verfahren einstellen läßt.

Vor Diskussion des numerischen Verfahrens sollen zunächst jedoch die grundlegenden Gleichungen angegeben werden. In Analogie zu der bereits diskutierten quasi-zweidimensionalen Brennstabbeschreibung soll die Temperaturberechnung in Brennstoff, Hülle und umgebender Struktur von der radialen Koordinate  $r$ , die Behandlung des Kühlmittels dagegen von der axialen Koordinate  $z$  abhängen. Wegen des vergleichsweise geringen Einflusses der axialen Wärmeleitung im Brennstoff ist die Vernachlässigung dieser Koordinate unbedeutend, da die wesentlichere Kopplung der axialen Schnitte über die Kühlmitteltemperatur erfolgt. Die Vernachlässigung der azimuthalen Richtung ist dagegen von wesentlichem Einfluß, wie beispielsweise Untersuchungen von Steiner und Elbel /41/ zeigen. Sie ist im Rahmen dieser 1-D-Modellvorstellungen jedoch nicht zu realisieren, weil hierfür eine zweidimensionale mechanische und thermohydraulische Behandlung Voraussetzung wäre. Folgender Ansatz wird verwendet:

Radial (Brennstoff, Hülle, Struktur):

$$\rho \frac{\partial}{\partial t}(h) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( \lambda r \frac{\partial \theta}{\partial r} \right) + q''' \quad (1)$$

Axial (Kühlmittel)

$$\begin{aligned}
 & \frac{\partial}{\partial t} (A_c \cdot \rho_c \cdot e_c) + \frac{\partial}{\partial z} (A_c \cdot \rho_c \cdot e_c \cdot w_c) \\
 & = A_c \left[ -\rho_c \cdot g \cdot w_c - \frac{\partial}{\partial z} (p_c \cdot w_c) + \frac{\partial}{\partial z} \left( \lambda_c \cdot \frac{\partial \vartheta_c}{\partial z} \right) \right. \\
 & \quad \left. + q''_{cl,c} \cdot \frac{2\pi R_{cl,o}}{A_c} - q''_{c,s} \cdot \frac{2\pi R_{s,i}}{A_c} + q_c''' \right] + S \cdot e_c^*
 \end{aligned} \tag{2}$$

mit

- $\rho$  : Dichte
- $h$  : Enthalpie per Masseneinheit
- $r$  : radiale Koordinate
- $\lambda$  : Wärmeleitfähigkeit
- $\vartheta$  : Temperatur
- $q'''$  : Leistungsdichte
- $A$  : Kühlkanalfläche
- $e$  : totale Energie per Masseneinheit
- $z$  : axiale Koordinate
- $w$  : Kühlmittelgeschwindigkeit
- $g$  : Gravitationskonstante
- $p$  : Druck
- $q''$  : Wärmestromdichte
- $R$  : Oberflächen-Radius
- $S$  : Kühlmittel-Zu- bzw. Abstrom per Längeneinheit und Zeit mit totaler Energie  $e^*$  (Quellterm)
- $f, cl$  : Brennstoff, Hülle
- $c, s$  : Kühlmittel, Struktur
- $i, o$  : innen, außen

Mit  $dh = c \, d\vartheta$  lässt sich Gleichung (1) in die bekannte Form bringen

$$c \cdot \rho \cdot \frac{\partial \vartheta}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( \lambda r \frac{\partial \vartheta}{\partial r} \right) + q''' \quad (3)$$

mit  $c$  : spezifische Wärme

Gleichung (2) ist die eindimensionale Energiegleichung für das Kühlmittel unter Vernachlässigung der inneren Reibung sowie der Arbeit der Reibkraft an der Wand (vgl. /36/).

Mit

$$e_c = h_c - \frac{p_c}{\rho_c} + \frac{w_c^2}{2} \quad (4)$$

wobei der Anteil der kinetischen Energie allerdings vernachlässigt werden soll, erhält man

$$\left. \begin{aligned} & h_c \frac{\partial}{\partial t} (A_c \rho_c) + A_c \rho_c c_c \frac{\partial \vartheta_c}{\partial t} - \frac{\partial}{\partial t} (A_c p_c) \\ & + h_c \frac{\partial}{\partial z} (A_c \rho_c w_c) + A_c \rho_c c_c w_c \frac{\partial \vartheta_c}{\partial z} - \frac{\partial}{\partial z} (A_c p_c w_c) \\ & = A_c \left[ -\rho_c \cdot g \cdot w_c - \frac{\partial}{\partial z} (p_c \cdot w_c) + \frac{\partial}{\partial z} \left( \lambda_c \cdot \frac{\partial \vartheta_c}{\partial z} \right) \right. \\ & \left. + q''_{cl,c} \cdot \frac{2\pi R_{cl,o}}{A_c} - q''_{c,s} \cdot \frac{2\pi R_{s,i}}{A_c} + q''' \right] + S \cdot e_c^* \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

Mit der Kontinuitätsgleichung (vgl. /36/)

$$\frac{\partial}{\partial t} (A_c \rho_c) + \frac{\partial}{\partial z} (A_c \rho_c w_c) = S \quad (6)$$

und unter Vernachlässigung der axialen Wärmeleitung und der Gravitation erhält man

$$\left. \begin{aligned} & \rho_c c_c \frac{\partial \vartheta_c}{\partial t} + \rho_c c_c w_c \frac{\partial \vartheta_c}{\partial z} \\ & = \frac{\partial p_c}{\partial t} + \frac{p_c}{A_c} \frac{\partial A_c}{\partial t} + \frac{w_c p_c}{A_c} \frac{\partial A_c}{\partial z} + q''_{cl,c} \frac{2\pi R_{cl,o}}{A_c} \\ & \quad - q''_{c,s} \frac{2\pi R_{s,i}}{A_c} + q'''_c + \frac{S}{A_c} (h_c^* - c_c \vartheta_c) \end{aligned} \right\} (7)$$

Gleichung (3) und (7) sollen im folgenden weiter diskutiert werden.

### 3.1.1 Radiale Behandlung

Das in /35/ vorgeschlagene iterative Verfahren zur Lösung der Wärmeleitungsgleichung verwendete eine Ansatzfunktion vom Typ der stationären Lösung. Unter Verwendung dieser Funktion wird nun ein gemischt implizit - explizites Verfahren aufgebaut. Die vorgesehene Brennstabgeometrie wird für jeden axialen Schnitt in dünne zylindrische Zonen diskretisiert. Die bekannte stationäre Lösung für den Fall konstanter Volumenleistung  $q'''$  und konstanter Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  lautet

$$\vartheta(r) = -\frac{q'''}{4\lambda} \cdot r^2 + C'_1 \cdot \ln r + C'_2 \quad (8)$$

Das transiente Problem kann wie in /35/ beschrieben durch folgenden Ansatz angenähert werden:

$$\vartheta(r,t) = -\frac{q'''_{fik}(t)}{4\lambda} \cdot r^2 + C_1(t) \cdot \ln r + C_2(t) \quad (9)$$

mit 
$$q''''_{\text{fik}}(t) = q'''' - c \cdot \rho \cdot \frac{\partial \vartheta}{\partial t} \tag{10}$$

$q''''_{\text{fik}}$  : fiktive transiente Leistungsdichte

Die Konstanten in Gleichung (9) können durch die unbekanntenen Temperaturen an den Oberflächen der betrachteten radialen Zone  $j$  ersetzt werden. Abb. 2 zeigt zunächst das gewählte räumliche und zeitliche Diskretisierungsgitter.

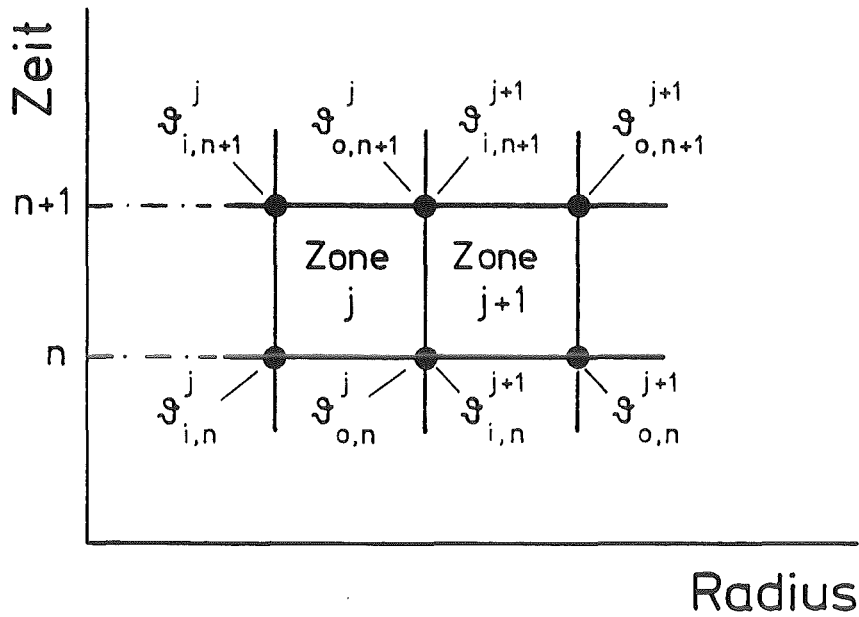


Abb. 2: Räumliche und zeitliche Diskretisierung in Zone  $j, j+1$  zur Zeit  $t, t+1$



$$\mathfrak{S}^j(r,t) = \mathfrak{S}_o^j + \frac{q_{fik}^{'''j}}{4\lambda^j} \left[ (r_o^j)^2 - r^2 \right] + \frac{\ln \frac{r}{r_o^j}}{\ln \frac{r_o^j}{r_i^j}} \cdot \left. \begin{array}{l} \\ \left\{ \mathfrak{S}_o^j - \mathfrak{S}_i^j + \frac{q_{fik}^{'''j}}{4\lambda^j} \left[ (r_o^j)^2 - (r_i^j)^2 \right] \right\} \end{array} \right\} \quad (11)$$

Es werden nun räumliche und zeitliche Wichtfaktoren eingeführt:

$$X^j = \beta_i^j X_i^j + \beta_o^j X_o^j \quad ; \quad \beta_i^j + \beta_o^j = 1 \quad (12)$$

$$\tilde{X} = \theta X_n + (1 - \theta) X_{n+1} \quad (13)$$

mit  $\beta$  = räumlicher Wichtfaktor  
 $\theta$  = zeitlicher Wichtfaktor

$\theta = 0.5$  führt beispielsweise zu einem zeitzentrierten, gemischt implizit - expliziten Ansatz nach Crank - Nicolson (vgl. /37/).

Der Wärmeübergang von Zone  $j$  zu Zone  $j+1$  stellt nun die Verknüpfung zwischen den Beschreibungen der einzelnen Zonen her:

$$2\pi r_o^j q_o''^j = 2\pi r_i^{j+1} q_i''^{j+1} \quad (14)$$

Dies führt unter Verwendung von (13) auf

$$\begin{aligned} & (1 - \theta) \cdot r_{o,n}^j \cdot q_{o,n}''^j + \theta \cdot r_{o,n+1}^j \cdot q_{o,n+1}''^j \\ & = (1 - \theta) \cdot r_{i,n}^{j+1} \cdot q_{i,n}''^{j+1} + \theta \cdot r_{i,n+1}^{j+1} \cdot q_{i,n+1}''^{j+1} \end{aligned} \quad (15)$$

Die in Gl. (15) benötigten Wärmeströme erhält man durch Differenzieren von Gl. (11).

$$q''^j(r, t=t_n) = -\lambda_n^j \frac{\partial \vartheta^j(r, t=t_n)}{\partial r} = \frac{q_{\text{fik},n}'''}{2\lambda_n^j} \cdot r - \frac{\lambda_n^j}{r \cdot \ln \frac{r_{o,n}^j}{r_{i,n}^j}} \left\{ \vartheta_{o,n}^j - \vartheta_{i,n}^j + \frac{q_{\text{fik},n}'''}{4\lambda_n^j} \left[ (r_{o,n}^j)^2 - (r_{i,n}^j)^2 \right] \right\} \quad (16)$$

$$q''^j(r, t=t_{n+1}) = \text{analog} \quad (16')$$

Der im Term  $q_{\text{fik},n+1}''''^j$  enthaltene Differentialquotient (vgl. Gl. (10)) wird durch den hinteren, der im Term  $q_{\text{fik},n}''''^j$  enthaltenen mittels des vorderen Differenzenquotienten approximiert.

Die schon in Kapitel 2 beschriebenen, wegen der hohen Spannungen im Brennstoff auftretenden Risse und der Wärmeübergang im Gasspalt führen u.U. zu nicht kontinuierlichen Temperaturverläufen, wie sie Abb. 3 zeigt. Sie können im Rahmen der gewählten Diskretisierung durch Einführen von Wärmewiderständen beschrieben werden:

$$\vartheta_{o,n+1}^j = \vartheta_{i,n+1}^{j+1} + \frac{q_{o,n+1}''^j}{\alpha_{o,n+1}^j} \quad (17)$$

mit  $\alpha$  : Wärmeübergangszahl

Betrachtet man die Größen  $\vartheta_{i,n+1}^j$  als Unbekannte, dann lassen sich die vorstehenden Gleichungen nach einiger Umformung wie folgt zusammenfassen:

$$a^j \vartheta_{i,n+1}^{j-1} + b^j \vartheta_{i,n+1}^j + c^j \vartheta_{i,n+1}^{j+1} = d^j \quad (18)$$

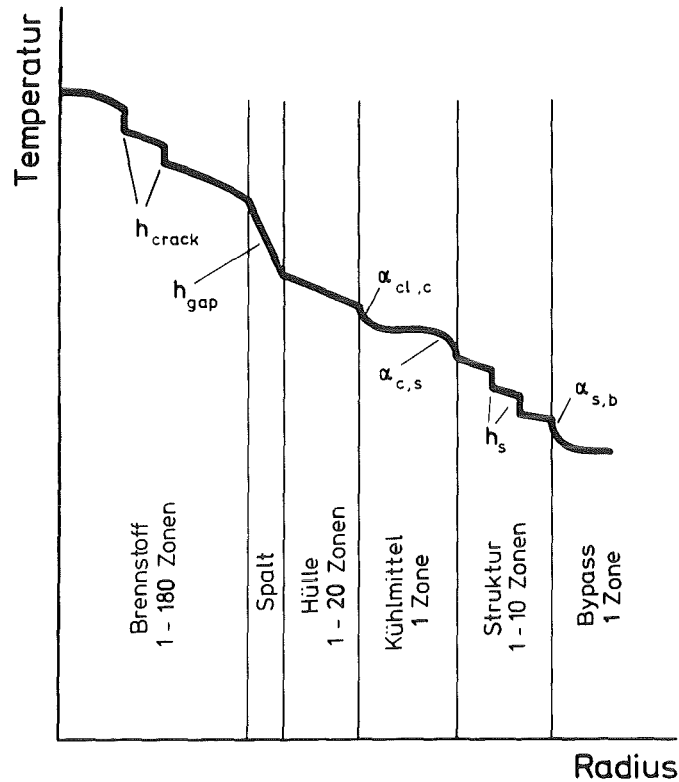


Abb. 3: Radiales Brennstab-Modell und Temperaturverlauf

- $\alpha_{cl,c}$  = Wärmeübergangszahl Hülle - Kühlmittel
- $\alpha_{c,s}$  = Wärmeübergangszahl Kühlmittel - Struktur
- $\alpha_{s,b}$  = Wärmeübergangszahl Struktur - Bypass
- $h_{crack}$  = Wärmedurchgangszahl in einem Riß
- $h_{gap}$  = Wärmedurchgangszahl im Spalt Hülle-Brennstoff
- $h_s$  = Wärmedurchgangszahl zwischen verschiedenen Strukturlagen

Gleichung (18) beschreibt ein tridiagonales Gleichungssystem, das sich mit üblichen Verfahren lösen läßt.

Brennstoff und Hülle werden gemeinsam behandelt. Damit bleiben je eine innere und äußere Randbedingung zu bestimmen. Für den innersten Punkt wird ein adiabatischer Zustand definiert, für

den äußersten Punkt wird die Kühlkanaltemperatur verwendet, wobei der Wärmeübergang über Gleichung (17) erfaßt ist.

Innere Randbedingung (Zone 1):

$$(1 - \theta) r_{i,n}^1 q_{i,n}'' + \theta r_{i,n+1}^1 q_{i,n+1}'' \stackrel{!}{=} 0 \quad (19)$$

Ein spezieller Ansatz ist notwendig für den Fall  $r_i^1 = 0$ .

Äußere Randbedingung (Zone jj+1):

$$\vartheta_i^{jj+1} = \vartheta_c \quad (20)$$

Entsprechend gilt für die Strukturzonen außerhalb des Kühlkanales

Innere Randbedingung (Zone s1):

$$\vartheta_i^{s1} = \vartheta_c - \frac{q_{c,s}''}{\alpha_{c,s}} \quad (21)$$

Äußere Randbedingung (Zone sjj+1):

$$\vartheta_i^{sjj+1} = \vartheta_b \quad (22)$$

mit  $\vartheta_b$  : Bypassstemperatur

Der Wärmeübergang zum Bypass ist wieder über Gleichung (17) zwischen der äußersten Strukturzone sjj und der Bypass-Zone sjj+1 berücksichtigt.

Als Unbekannte ist nun noch die Kühlkanaltemperatur  $\vartheta_c$  in das Gleichungssystem einzuführen.

### 3.1.2 Axiale Behandlung

Auch hier wird wieder eine gemischt implizit - explizite Beschreibung nach Gleichung (13) angesetzt. Abb. 4 zeigt die verwendete Diskretisierung. Damit läßt sich Gleichung (7) wie folgt schreiben:

$$\begin{aligned}
 & \theta \left\{ \varrho_{n+1}^l \cdot c_{n+1}^l \cdot \frac{\partial \vartheta^l}{\partial t} \Big|_{n+1} + \frac{\dot{m}_{n+1}^l}{A_{n+1}^l} \cdot c_{n+1}^l \cdot \frac{\partial \vartheta^l}{\partial z} \Big|_{n+1} \right\} \\
 + (1-\theta) & \left\{ \varrho_n^l \cdot c_n^l \cdot \frac{\partial \vartheta^l}{\partial t} \Big|_n + \frac{\dot{m}_n^l}{A_n^l} \cdot c_n^l \cdot \frac{\partial \vartheta^l}{\partial z} \Big|_n \right\} \\
 = \theta & \left\{ q_{cl,c,n+1}^{''l} \cdot \frac{2\pi R_{cl,o,n+1}^l}{A_{n+1}^l} - q_{c,s,n+1}^{''l} \cdot \frac{2\pi R_{s,i,n+1}^l}{A_{n+1}^l} + q_{n+1}^{'''l} \right\} \\
 + (1-\theta) & \left\{ q_{cl,c,n}^{''l} \cdot \frac{2\pi R_{cl,o,n}^l}{A_n^l} - q_{c,s,n}^{''l} \cdot \frac{2\pi R_{s,i,n}^l}{A_n^l} + q_n^{'''l} \right\} \\
 + \theta & \left\{ \frac{\partial p^l}{\partial t} \Big|_{n+1} + \frac{p_{n+1}^l}{A_{n+1}^l} \cdot \frac{\partial A^l}{\partial t} \Big|_{n+1} + \frac{\dot{m}_{n+1}^l \cdot p_{n+1}^l}{\varrho_{n+1}^l \cdot (A_{n+1}^l)^2} \cdot \frac{\partial A^l}{\partial z} \Big|_{n+1} \right. \\
 & \left. + \frac{S_{n+1}^l}{A_{n+1}^l} (h_{n+1}^{*l} - c_{n+1}^l \cdot \vartheta_{n+1}^l) \right\} \\
 + (1-\theta) & \left\{ \frac{\partial p^l}{\partial t} \Big|_n + \frac{p_n^l}{A_n^l} \cdot \frac{\partial A^l}{\partial t} \Big|_n + \frac{\dot{m}_n^l \cdot p_n^l}{\varrho_n^l \cdot (A_n^l)^2} \cdot \frac{\partial A^l}{\partial z} \Big|_n \right. \\
 & \left. + \frac{S_n^l}{A_n^l} (h_n^{*l} - c_n^l \cdot \vartheta_n^l) \right\}
 \end{aligned} \tag{23}$$

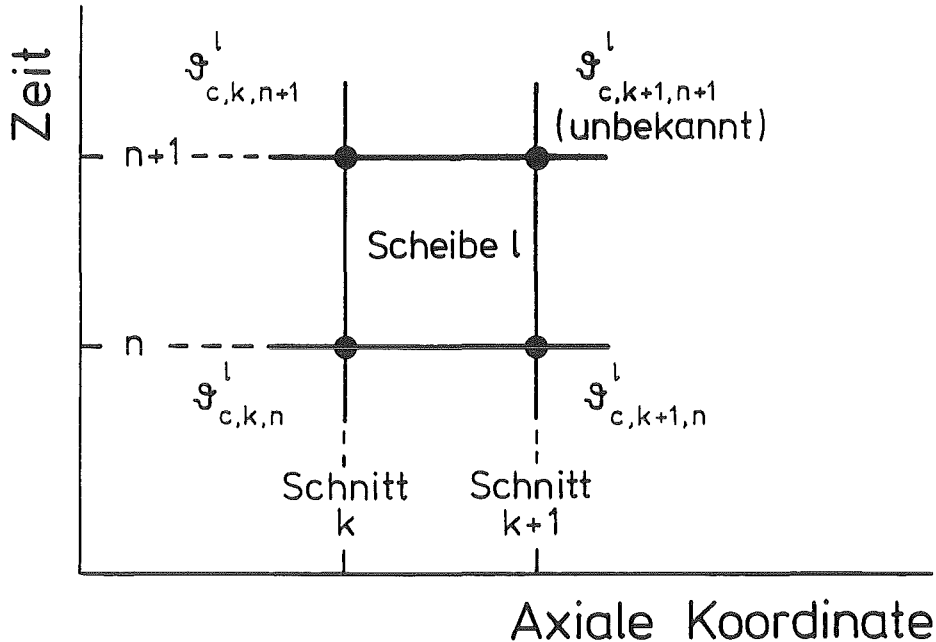


Abb. 4: Räumliche und zeitliche Diskretisierung in der Kühlmittelzone l zur Zeit t, t+1.

Auf die Diskussion der mit der Enthalpie  $h^*$  und  $c \cdot \vartheta$  versehenen Quellterme wird zunächst verzichtet. Sie sind für normale Brennstabprobleme nicht relevant. Allerdings werden sie für das Kühlmittel-Blockadmodell (Abschnitt 3.2) benötigt.

Um das Gleichungssystem (18) für jeden Schnitt, von unten nach oben der Geometrie des Stabes folgend, lösen zu können, dürfen bei der Berechnung der Temperatur  $\vartheta_{c,k+1,n+1}^l$  in Gl. (23) keine Unbekannten aus nächsthöheren Schnitten (z.B.  $\vartheta_{c,k+1,n+1}^{l+1}$ ) auftauchen. Das schränkt die Wahl der Differenzenapproximationen ein, führt letztlich jedoch zu einem extrem schnellen Verfahren. Es gilt unter Verwendung einer räum-

lichen Mittelung nach Gl. (12) mit  $\beta = 0.5$

$$\left. \frac{\partial \vartheta^l}{\partial t} \right|_{n+1} = 0.5 \frac{\vartheta_{k,n+1}^l - \vartheta_{k,n}^l}{\Delta t} + 0.5 \frac{\vartheta_{k+1,n+1}^l - \vartheta_{k+1,n}^l}{\Delta t} \quad (24)$$

(Rückwärts-Differenz)

$$\left. \frac{\partial \vartheta^l}{\partial t} \right|_n = \left. \frac{\partial \vartheta^l}{\partial t} \right|_{n+1} \quad (25)$$

(Vorwärts-Differenz)

$$\left. \frac{\partial \vartheta^l}{\partial z} \right|_{n+1} = \frac{\vartheta_{k+1,n+1}^l - \vartheta_{k,n+1}^l}{\Delta z^l} \quad (26)$$

(Rückwärts-Differenz)

$$\left. \frac{\partial \vartheta^l}{\partial z} \right|_n = \frac{\vartheta_{k+1,n}^l - \vartheta_{k,n}^l}{\Delta z} \quad (27)$$

(Rückwärts-Differenz)

Diese Differenzenapproximationen sind von der Genauigkeit  $O(\Delta t)$ . Umfangreiche Tests zeigten befriedigendes Verhalten bei Verwendung einer automatischen Zeitschrittsteuerung, die die Größe des zeitlichen Temperaturinkrementes je Zeitschritt  $\Delta t$  vernünftig begrenzt.

Die unbekannte Temperatur in Gl. (23) läßt sich nach einigem Umformen in das tridiagonale Gleichungssystem (18) einfügen, dessen Zeile  $jj+1$  dann lautet

$$a^{jj+1} \cdot \vartheta_{i,k+1,n+1}^{jj} + b^{jj+1} \cdot \vartheta_{c,k+1,n+1}^{jj+1} + 0 = d^{jj+1} \quad (28)$$

Als Randbedingung für den untersten Schnitt wird  $a = 0$ ,  $b = 1$  sowie  $d = \vartheta_c (z = 0)$  (Kühlmittel-Einlaßtemperatur) gefordert. Für Rechnungen mit Struktur außerhalb des Kühlkanals muß der dritte Term in Gl. (28) durch  $c^{jj+1} \cdot \vartheta_{i,k+1}^{s1}$  ersetzt werden.

### 3.1.3 Phasenwechsel

Leistungsexkursionen (TOP oder RIA\*) können zum Schmelzen von Brennstäben führen, während Kühlmittelverlust (LOF, LOCA\*) zu Kühlmittelsieden und -verdampfen führen kann; mit anschließender Austrocknung des Kühlkanales kann auch hier Brennstabversagen durch Schmelzen auftreten.

Aus der Thermodynamik sind wandernde Schmelzfronten, die die festen und flüssigen Phasen separieren, und deren Wanderrichtung und -geschwindigkeit von den lokalen Wärmeströmen abhängen, unter dem Namen "Stefan-Problem" bekannt. Im Gegensatz zu den üblicherweise diskutierten Problemen (z.B. Eindringen von Frost in den Erdboden mit Phasenwechsel Wasser zu Eis /42/), bei denen außer an der Umwandlungsstelle keine anderen Wärmequellen oder -senken vorhanden sind, muß beim Brennstab die räumliche Verteilung der inneren Wärmequellen mitberücksichtigt werden. Das verhindert die direkte Übernahme solcher in der Literatur beschriebener Verfahren, wie sie beispielsweise von Goodrich /42/ und anderen /43-48/ vorgestellt werden.

Die Beschreibung der wandernden Phase wird häufig durch Einführen einer zusätzlichen Gleichung, die diese Bewegung abbildet, erfaßt. Eigene Untersuchungen, die im Rahmen einer Diplomarbeit /49/ verifiziert wurden, zeigten deutlich, daß es schwierig ist, solche zusätzlichen Gleichungen in eine existierende numerische Methode zur Temperaturberechnung einzuführen, obwohl der entsprechende Weg zum Ziel führte.

---

\* Beim Leichtwasserreaktor: RIA = Reactivity Initiated Accident,  
LOCA = Loss of Coolant Accident.



Eine andere vorgeschlagene Methode, die aufzubringende Schmelzwärme durch fiktive Überhöhung der spezifischen Wärme im Bereich der Umwandlungsstelle zu erfassen, führt zwangsläufig zu numerischen Stabilitätsproblemen wegen der dann extremen Nichtlinearität der Werkstoffgrößen.

Für die Verwendung im Bereich der Brennstabanalyse bietet sich dagegen die Enthalpie-Methode /50/ an, weil

- a) keine speziellen Bedingungen an der Umwandlungsstelle erfüllt werden müssen,
- b) das Wandern der Phasengrenze im Rahmen der ohnehin getroffenen Diskretisierung verfolgt wird, jedoch keine exakte Verfolgung durchgeführt werden muß,
- c) der Übergangsbereich in der Mischzone fest - flüssig, die sich u.U. über einen größeren radialen Bereich erstrecken kann, leicht zu beschreiben ist.

Die folgenden Überlegungen orientieren sich deshalb an dieser Methode. Zur Vereinfachung des numerischen Problems wird eine Variable  $\chi$  eingeführt, deren Wert 0 ist im festen Zustand, 1 im flüssigen, sowie zwischen 0 und 1 während des Schmelzens oder Erstarrens. Ähnliche Ansätze werden auch von anderen Autoren verwendet (z.B. /51/).

$$\begin{aligned} \chi &= 0 & \text{für} & \quad \vartheta \leq \vartheta_{\text{Solidus}} \\ \chi &= 1 & \text{für} & \quad \vartheta \geq \vartheta_{\text{Liquidus}} \end{aligned}$$

Für die Beziehung zwischen Temperatur und Enthalpie kann dann formuliert werden

$$dh = \begin{cases} cd\vartheta & \vartheta < \vartheta(\chi=0) \\ & \text{(Solidus-Temperatur)} \\ Ld\chi & \vartheta(\chi=0) \leq \vartheta \leq \vartheta(\chi=1) \\ cd\vartheta & \vartheta > \vartheta(\chi=1) \\ & \text{(Liquidus-Temperatur)} \end{cases} \quad (29)$$

mit  $L$  = Phasenwechsel-Energie (latente Wärme)

Unter Verwendung des unveränderten Gleichungssystems (18) u. (28) kann nun eine fiktive Temperaturerhöhung zur Bestimmung von  $\chi$  herangezogen werden:

$$\Delta\chi_{n+1} = \frac{c}{L} \Delta\mathfrak{S}_{\text{fik},n+1} \quad (30)$$

Die Variable  $\chi$  erhält man aus

$$\chi_{n+1} = \chi_n + \Delta\chi_{n+1} \quad (31)$$

Die tatsächliche Temperatur wiederum kann zwischen Solidus- und Liquidus-Linie als Funktion von  $\chi$  bestimmt werden.

$$\mathfrak{S}_{n+1} = \mathfrak{S}(\chi_{n+1}) \quad (32)$$

Das Verfahren kann gleichermaßen auf den Phasenwechsel beim Brennstabschmelzen als auf das Verdampfen von Kühlmittel angewendet werden. Natürlich sind die sich ändernden Werkstoffgrößen zu berücksichtigen. Zunehmender Dampfanteil bei vorgegebenem Massenstrom führt zu einer drastischen Erhöhung der Kühlkanalgeschwindigkeit, außerdem ist der Wärmeübergang Hülse - Kühlmittel bei der unveränderten Annahme einphasiger Strömung nur durch spezielle Modellannahmen beschreibbar.

#### 3.1.4 Numerische Methode

Abb. 5 zeigt die tridiagonale Struktur der Matrix, wie sie sich aus Gl. (18) mit (28) ergibt. Für URANUS wird zur Lösung ein schneller Gauss-Algorithmus nach /37/ verwendet.

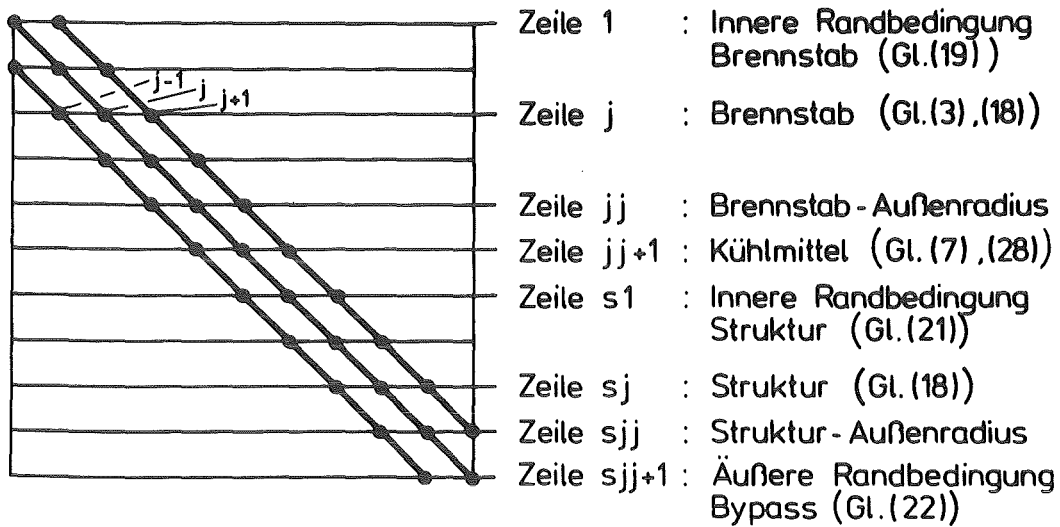


Abb. 5: Struktur des tridiagonalen Gleichungssystems

Zur Erzielung rein expliziter Lösungen (mit den typischen numerischen Stabilitätsproblemen) kann der zeitliche Wichtfaktor  $\theta$  aus der Gl. (13) auf 0 gesetzt werden. Mit  $\theta = 1$  erhält man rein implizite Lösungen unter Vernachlässigung der historischen Zustände. Mit  $\theta = 0.5$  erhält man einen zeitzentrierten Ansatz nach Crank-Nicolson. Umfangreiche numerische Tests ergaben optimale Ergebnisse mit Wichtungen  $\theta \approx 0.6$ .

Es konnte gezeigt werden, daß dieses gemischte Verfahren nicht mehr Rechenzeit benötigt als häufig angesetzte rein explizite Verfahren.

Als wesentliche einflußnehmende Größe bleibt noch die räumliche Wichtung  $\beta$  zu bestimmen, durch deren Einstellung typische Ergebnisse erzielt werden können, die entweder denen eines reinen FD-Verfahrens entsprechen, Lösungen wie nach FEM-Verfahren ergeben, oder - unter Vermeidung bekannter Probleme

bei sehr grober Diskretisierung (Überschwingen bei FEM, Unterschätzen der exakten Lösung bei FD) - zu einer optimalen "Kombination" beider führen. Untersuchungen hierzu wurden von Laßmann /40/ und Kaltenthaler /52/ durchgeführt und sollen hier nicht wiederholt werden. Als bestes Ergebnis wurde eine Einstellung

$$\beta_i^{j-1} = \beta_i^{j+1} = 0.2$$

und 
$$\beta_i^j = 0.8 \quad (33)$$

ermittelt, die den mittleren Punkt der verwendeten Diskretisierung jeweils stärker berücksichtigt. Wie Abb. 6 an einem einfachen Beispiel eines innen isolierten Brennstoff-Vollzylinders mit Hülle zeigt, für den das Abklingverhalten der Temperatur vom stationären Startwert 2500 °C aus untersucht wird, deckt sich diese Methode mit der exakten Lösung.

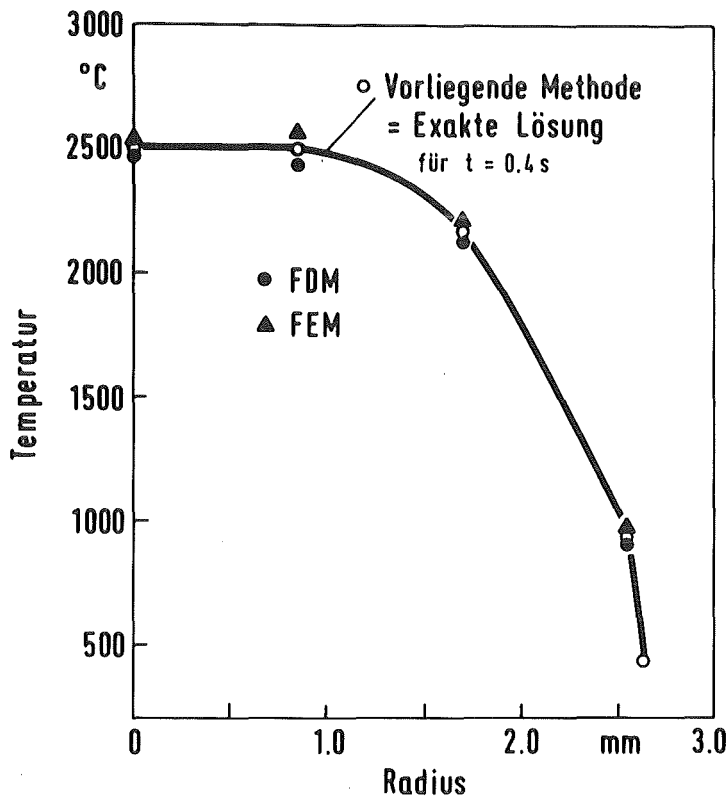


Abb. 6: Vergleich der vorliegenden Methode mit Wichtung 0.2/0.8 gegen die exakte Lösung sowie mit FEM und FD-Verfahren. 3 radiale Zonen im innen isolierten Vollzylinder; Anfangsbedingung: für  $t < 0$  konstante Temperaturverteilung  $\vartheta(r,t) = 2500$  °C; für  $t > 0$  ist  $\vartheta(r_a,t) = 400$  °C.

Es bleibt zu bemerken, daß wegen der starken Temperaturabhängigkeit der Werkstoffgrößen eine Iteration der Temperaturberechnungen erfolgen muß. In der Regel genügen 2 - 3 Iterationen bei Genauigkeitsschranken von 1 Kelvin. Eine anschließende nochmals umschließende Iteration ist wegen der nichtlinearen Verknüpfung mit dem mechanischen System notwendig.

Werkstoffdaten werden durch eine spezielle Unterprogrammtechnik (vgl. /34/) zur Verfügung gestellt, die eine Auswahl typischer oder sehr spezieller Daten und Modelle ermöglicht. Hierauf soll an dieser Stelle nicht weiter eingegangen werden. Die Berechnung der Wärmeübergangszahlen erfolgt in speziellen Unterprogrammen, die ebenfalls an anderer Stelle ausführlich dokumentiert sind /6, 34/.

Ergebnisse von Rechnungen mit der in diesem Kapitel vorgestellten Methode werden in Kapitel 4 vorgestellt.

### 3.2 Modell zur Berücksichtigung einer Kühlkanalblockade

Bei der Analyse möglicher Störfallabläufe im Kern eines natriumgekühlten Brutreaktors spielen lokale Kühlungsstörungen als denkbare Einleitungsmechanismen für schwerwiegendere Störfälle eine Rolle. Dabei ist die Frage nach der Möglichkeit einer raschen Schadensausbreitung bei Kühlkanalverstopfungen von besonderer Bedeutung. Im Rahmen der Experimentserie Mol-7c werden deshalb in Zusammenarbeit zwischen KfK und CEN/SCK Mol Bündelexperimente durchgeführt, in denen eine lokale Kühlkanalblockade simuliert wird /53/. Ziel der Experimente ist es, eine Aussage über Schadensabläufe und Schadenspropagation bei Kühlmittelstörungen zu erhalten. Erläuterungen zum experimentellen Aufbau und Ablauf finden sich auch in Kapitel 4.

Die Blockade kann wegen ihres extremen Einflusses auf die Kühlkanalkonfiguration Querströmungen des Kühlmittels verschiedenster Art bewirken, so daß eine modelltheoretisch detaillierte Behandlung der Blockade nur dreidimensional erfolgen kann. Ergebnisse derartiger Untersuchungen liegen jedoch noch nicht vor.

Ohne eine Aussage zum Verhalten der Blockade läßt sich jedoch keine theoretische Aussage zum Brennstoffverhalten gewinnen, die mit den umfangreichen vorhandenen experimentellen Befunden verglichen werden könnte. Da eine theoretische Auswertung des Brennstoffverhaltens vor allem im Hinblick auf die dringende Entwicklung der Werkstoffphysik unter transienten Bedingungen notwendig ist, wird im folgenden ein einfaches parametrisches Modell URBLOC zur Behandlung der Blockade entwickelt, das auf einen Vorschlag von K. Laßmann aufbaut. Die Anwendung und Überprüfung des Modelles in Verbindung mit dem transienten integralen Brennstabcode URANUS an Hand experimenteller Meßdaten aus den beiden Experimenten Mol-7c/1 und Mol-7c/2 wird im Abschnitt 4 vorgenommen.

Die folgenden Betrachtungen bauen auf den in 3.1 gezeigten Bilanzgleichungen für Masse und Energie im allgemeinen ein-dimensionalen Fall auf. Quellterme, also senkrecht zur Stromrichtung ein- bzw. ausströmende Massen, können berücksichtigt werden.

Um eine Modellvorstellung für eine Kühlkanalblockade mit den Anforderungen eines quasi-zweidimensionalen Brennstabcodes zu verknüpfen, müssen zunächst folgende Abstraktionen durchgeführt werden:

1. Es wird eine Einzelstab-Blockade angenommen; Geometrien typischer Bündelexperimente wie Mol-7c werden qualitativ beschrieben.
2. Es wird Rotationssymmetrie angenommen.
3. Kühlmittelströme sind nur in axialer Richtung zugelassen.
4. Querströmungen infolge der Blockade oder anderer geometrischer Konfigurationen werden parametrisch über Quellterme berücksichtigt.

Abb. 7 zeigt die angenommene Form der Stromlinien bei einer entsprechenden Einzelstabkonfiguration mit teildurchlässiger Blockade im zylindrischen Kühlkanal. Abb. 8 zeigt eine etwas schematischere Beschreibung, in der 3 Anteile des Kühlmittels beschrieben werden, die unterschiedliche Pfade durchlaufen. Anteil 3 des Kühlmittels verläßt infolge der Störung den Kühlkanal, wird unter Umständen an anderen Stäben erwärmt, und tritt als Anteil 3' oberhalb der Blockade wieder in den betrachteten Kühlkanal ein. Anteil 2 verbleibt im Kühlkanal, kann jedoch nicht mehr den Stab, sondern nur noch die Blockade kühlen; Anteil 1 dringt in die Blockade ein und steht noch zur Kühlung des Stabes zur Verfügung. Als Option steht ein Anteil 4 zur Verfügung, der extern in speziellen Rohrsystemen in

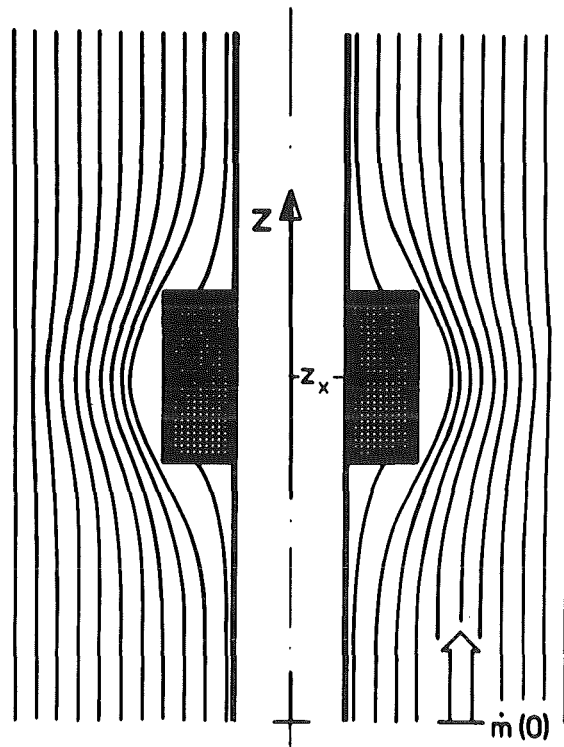


Abb. 7: Qualitative Darstellung der Stromlinien um eine teilweise durchlässige Einzelstab-Blockade

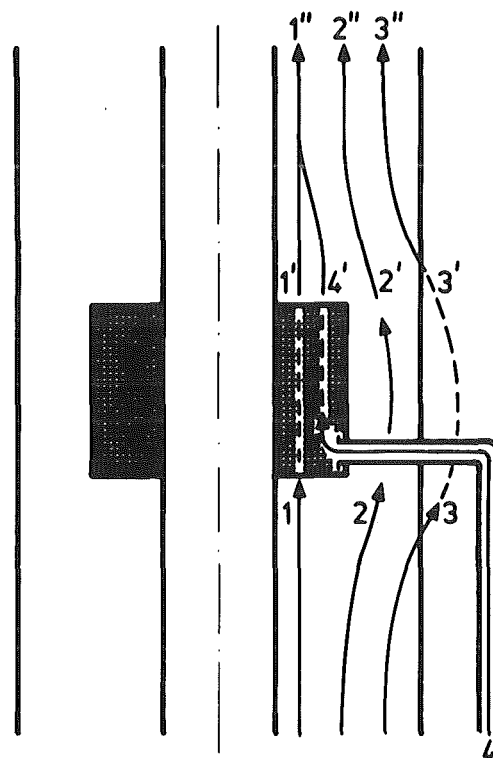


Abb. 8: Schematische Darstellung von unterschiedlichen Kühlmittelpfaden im Bereich der Blockade



die Blockade eingeführt wird (vgl. Zusatzkühlung Mol-7c). Es ist sofort ersichtlich, daß die Aufteilung der Massenströme und ihre unterschiedliche Erwärmung die wichtigsten Punkte zur Beschreibung der Blockade sind.

Abbildung 7 legt es nahe, für den Kühlkanal folgenden Ansatz für den Massendurchsatz  $\dot{m}$  zu wählen:

$$\dot{m}(z) = \dot{m}(0) \cdot \left( 1 - \alpha_0 \exp - \frac{(z - z_x)^2}{2\psi^2} \right) \quad (34)$$

$\dot{m}(0)$  = Massendurchsatz am Eintritt

Die Größen  $\alpha_0$  und  $\psi$  sind freie, zu adjustierende Modellparameter. Der Parameter  $\alpha_0$  bestimmt die Durchlässigkeit der Blockade ( $\alpha_0 = 1$ : keine Durchlässigkeit im Blockadezentrum  $z_x$ ,  $\alpha_0 = 0$ : volle Durchlässigkeit im Blockadezentrum), der Parameter  $\psi$  die Form der Stromlinien. Der Massendurchsatz im Zentrum der Blockade ist

$$\dot{m}(z_x) = \dot{m}(0) \cdot (1 - \alpha_0) \quad (35)$$

Als weiterer freier Parameter kann die Kühlkanalfläche  $A(z,t)$  angesehen werden.

Da die Form der Stromlinien oberhalb und unterhalb der Blockade nicht von vornherein als gleich angesehen werden kann, und weil sich eine Blockade unter Umständen axial über einen gewissen Bereich  $\Delta x$  erstrecken kann, wird Gleichung (34) wie folgt erweitert:

$$\begin{aligned}
 \dot{m}(z) &= \dot{m}(0) \cdot \left( 1 - a_0 \cdot \exp - \frac{(z - (z_x - \Delta x))^2}{2\psi_1^2} \right) && \begin{array}{l} \text{unterhalb} \\ \text{Blockade} \\ z < (z_x - \Delta x) \end{array} \\
 \dot{m}(z) &= \dot{m}(0) \cdot (1 - a_0) && \begin{array}{l} \text{in der Blockade} \\ (z_x - \Delta x) \leq z \leq (z_x + \Delta x) \end{array} \\
 \dot{m}(z) &= \dot{m}(0) \cdot \left( 1 - a_0 \cdot \exp - \frac{(z - (z_x + \Delta x))^2}{2\psi_2^2} \right) && \begin{array}{l} \text{oberhalb} \\ \text{Blockade} \\ z > (z_x + \Delta x) \end{array}
 \end{aligned} \tag{36}$$

Damit lassen sich axiale Kühlmittelstrom-Profile wie in Abb. 9 einstellen.

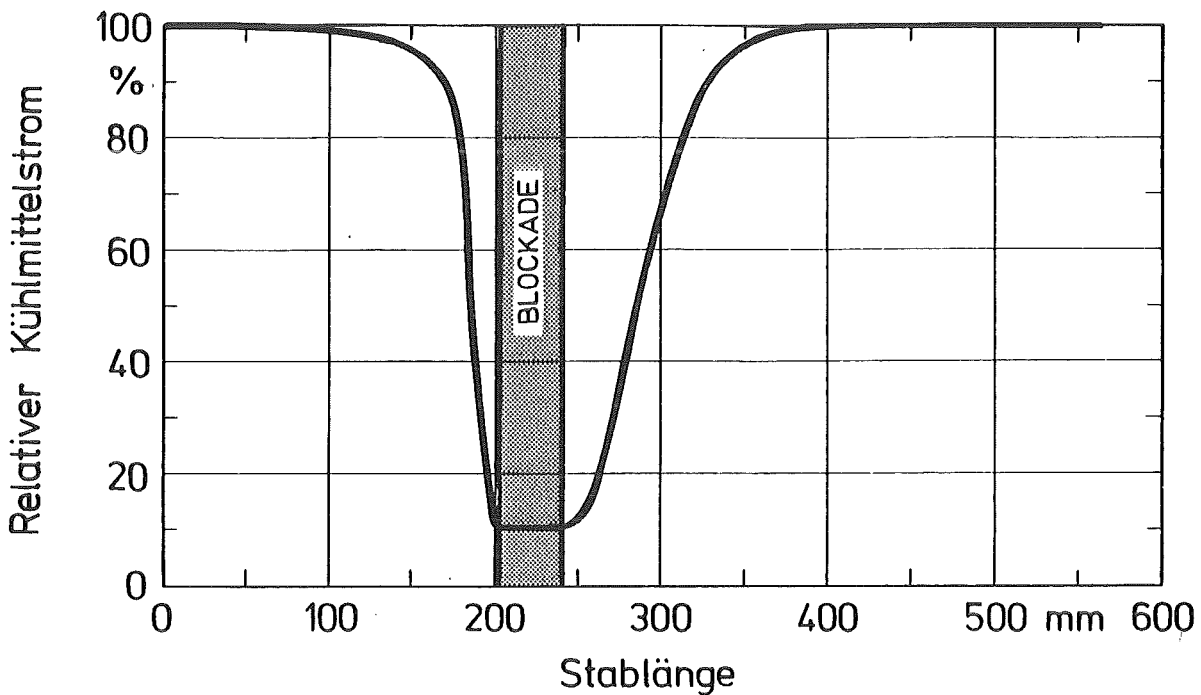


Abb. 9: Kühlmittelstrom nach dem URBLOC-Modell;  
10% Blockadekühlung, axiale Asymmetrie.

Der Quellterm der Kontinuitätsgleichung für eine Scheibe  $l$  wird aus der Differenz der Massenströme zwischen zwei axialen Schnitten  $k, k-1$  berechnet. Zusätzliche Querströmungen  $S^y$  (z.B. Gewinne aus Zusatzkühlung, Anteil 4 in Abb. 8) werden additiv behandelt:

$$S^l = \frac{\dot{m}_k - \dot{m}_{k-1}}{z_k - z_{k-1}} + S^{y,l} \quad (37)$$

Im folgenden soll die Enthalpie der zu- bzw. abfließenden Massen behandelt werden. Für die aus dem Kanal abfließenden Massen (Pfad 3) ist es naheliegend, die mittlere Enthalpie  $h$  des Kühlkanals anzunehmen. Die einströmenden Massen (Pfad 3', 4') können dagegen recht unterschiedliche Wege mit unterschiedlichen Aufheizspannen zurückgelegt haben. Der einfachste Ansatz besteht darin, der einströmenden Masse diejenige Enthalpie  $h^*$  zuzuordnen, die in einem Schnitt  $k^*$  ("charakteristischer Schnitt") herrscht. Die Auswahl dieses Schnitts ist der 4. freie Parameter des Blockademodels.

Die Bestimmung der freien Parameter durch Analyse des experimentellen Aufbaues Mol-7c wird in Kapitel 4 beschrieben.

Bei der Behandlung stationärer Vorgänge sind hauptsächlich die Verhältnisse im Brennstab und im Kühlmittel von Interesse. Bei transienten Vorgängen, bei denen ein steiler Temperaturgradient im Kühlmittel auftritt, hat eine möglicherweise außerhalb des Kühlkanals liegende Struktur jedoch eine wesentliche Funktion als Wärmesenke. Mit Hilfe der in Kapitel 3.1 skizzierten Möglichkeiten zur Behandlung von Strukturen außerhalb des Kühlkanals, die formal gleich wie ein Brennstab behandelt werden, ist es jedoch möglich, die Wärmekapazität von lokalen Kühlmittelblockaden zu berücksichtigen.

Bei den Experimenten Mol-7c/1 und Mol-7c/2 besteht diese lokale Blockade beispielsweise aus Stahlkugeln, die etwa 60% des Kühlkanalquerschnitts ausfüllen. Dieses Volumenverhältnis sowie der Innenradius der Ersatzstruktur stellen damit zwei weitere Parameter des Blockadmodells dar.

Ein Vergleich von Rechnungen mit und ohne Struktur bei Anwendung auf die Mol-7-Experimente zeigt gravierende Unterschiede im Anstieg der Kühlkanaltemperaturen nach Einleiten der Transiente. Ohne Berücksichtigung der Wärmekapazität des Käfigs werden bis zu vierfach schnellere Anstiege ermittelt, während eine nach obiger Abschätzung vorgenommene Berücksichtigung der Wärmesenke zu Temperaturverläufen führt, wie sie auch im Experiment erzielt wurden.

### 3.3 Zur Umstrukturierung von Brennstoffen

Neben der dominanten Abhängigkeit von der Temperatur sind Materialdaten für Brennstoffe in der Regel beeinflusst von lokaler Porosität, Korngröße, Stöchiometrie, Legierungszusammensetzung, Abbrandzustand, Neutronenfluß und nicht zuletzt dem Herstellungsverfahren. Spezielle Herstellungseinflüsse sind beispielsweise in den Konferenzen über "Charakterisierung und Qualitätskontrolle von Kernbrennstoffen" /54, 55/ dokumentiert. Während die Abbrandrechnung im Rahmen der Brennstabstrukturanalyse routinemäßig durchgeführt wird und Neutronenfluß und vom Herstellungsverfahren beeinflusste Daten als Randbedingungen in der Regel vorgegeben sind, bedürfen die übrigen Größen einer modellmäßigen Behandlung.

Die wesentlichen strukturverändernden Effekte, die während der Bestrahlung auftreten, sind

- Nachsintern der Pellets im Betrieb infolge Temperaturen weit oberhalb der Sintertemperatur, daraus Verdichten und Volumenänderung in radialer und axialer Richtung.
- Wandern von Poren entgegen dem Temperaturgradienten, daraus radienabhängige Porositätsverteilung und u.U. Ausbildung eines Zentralkanales mit entsprechender Auswirkung auf die Brennstabtemperaturen.
- Veränderung der Gefügestruktur und der Korngröße in Abhängigkeit von der örtlichen Temperatur, daraus Einfluß auf mechanische Eigenschaften und Gasfreisetzung.
- Ausbildung von Spaltgasblasen, die ihrerseits wandern können, dadurch Einfluß auf die Porosität.
- Änderung der Stöchiometrie mit dem Abbrand.
- Änderung der Plutoniumkonzentration wegen Entmischung und infolge unterschiedlicher Wirkungsquerschnitte, daraus Enthomogenisierung und Beeinflussung der radialen Leistungsverteilung (Flußdepression).
- Aufreißen des Brennstoffes infolge hoher Spannungen.
- Zusammendrücken vor allem großer Poren im Falle des behinderten Schwellens (hotpressing).

Aufbauend auf den grundlegenden Arbeiten von Nichols /56, 57/, Aßmann und Stehle /58/, Collins und Hargreaves /59/, Ainscough et al. /60/ und Blank et al. /61/ wurden in den letzten Jahren eine Reihe von Nachverdichtungsmodellen, Porenschrumpf- und Porenwandermodellen, Korngrößenmodellen und Porositätsbeschreibungen entwickelt (z.B. /62/ bis /72/), da keine Code-Entwicklung auf die Beschreibung dieser Effekte verzichten kann. Eine kritische Durchsicht der Literatur ergab dann auch, daß eine Neuentwicklung eines Modelles für diesen Bereich nicht sinnvoll sei, zumal experimentelle Ergebnisse zur Bestimmung von Parametern kaum zugänglich sind. Vielmehr wurde aus einer kritischen Wertung vorhandenen Materials ein für die eigenen Ansprüche sinnvoller Ansatz ausgewählt und durch Detailverbesserungen optimiert, wobei besonderer Wert auf die Kompatibilität und Konsistenz eingebrachter Modelle und Daten gelegt wurde. Zunächst wird deshalb der Begriff "Umstrukturierung" unterteilt in

- Poren-Einflüsse: Änderung von Porengröße und -zahl
- Gefüge-Einflüsse: Änderung der Korngröße und Ausbildung typischer Strukturzonen,

da dies die zu behandelnden Probleme zunächst überschaubarer macht, obwohl eine Reihe von gegenseitigen Abhängigkeiten eine modellmäßige Trennung erschwert. Im folgenden sollen die wesentlichen Effekte nur kurz dargestellt werden, um die Begründung der Auswahl bestimmter Modelle zu erleichtern.

### 3.3.1 Poren-Einflüsse

Folgende Prozesse nehmen direkten Einfluß auf Porengröße und Porenzahl:

- a) thermisch induziertes Nachsintern durch Schrumpfen von Poren infolge Temperatureinfluß
- b) Schrumpfen von Poren infolge behinderten Schwellens (Spannungseinflüsse, hotpressing)

- c) bestrahlungsinduziertes Nachsintern durch Erzeugung einer überschüssigen Leerstellenkonzentration im Bereich von Poren und Wanderung der Leerstellen zu den Korngrenzen
- d) Wanderung von Poren im radialen Temperaturgradienten zum Zentrum der Tablette
- e) Erzeugung von Spaltgasblasen (-poren) durch Akkumulieren der bei der Spaltung entstehenden Gasatome; Wanderung wie unter d) sowie Freisetzung nach außen.

Durch das kontinuierliche Bombardement mit energiereichen Teilchen <sup>4)</sup> werden im Gitter befindliche feine Poren zerstäubt, wodurch eine Leerstellenkonzentration oberhalb der thermischen Gleichgewichtskonzentration erzeugt wird. Obwohl die meisten dieser Leerstellen wieder zu Poren kondensieren oder von größeren Poren eingefangen werden, wandert ein beträchtlicher Teil zu den Korngrenzen und trägt somit zur Brennstoffverdichtung bei. Die Zahl aufgelöster Feinporen hängt direkt von der Spaltrate ab, und die ausgelöste Verdichtung kann entsprechend als abbrandabhängige Funktion geschrieben werden. Oberhalb einer gewissen Porengröße erfolgt allerdings keine vollständige Auflösung, sondern es wird angenommen, daß Spaltfragmente beim Durchdringen der größeren Poren kleine Volumenanteile Brennstoff vom Rand mitreißen, die sich auf der gegenüberliegenden Seite mit Leerstellen angereichert niederschlagen. Spaltfragmente, die am Rande einer Pore vorbeifliegen, führen dort zu einer lokalen Erhöhung der Leerstellenkonzentration, die ihrerseits zur Verdrängung von Materie in große Poren führt.

---

<sup>4)</sup> Die bei der Kernspaltung entstehenden Bruchstücke geben ihre Energie auf einer relativ kurzen Wegstrecke (einige  $\mu\text{m}$ ) an die in der Nähe ihrer Bahn liegenden Gitteratome ab, überwiegend durch Elektronenanregungs- und Ionisierungsprozesse, aber auch durch direkte Kernstöße, die zur Bildung von Frenkelpaaren führen. Der Kernbrennstoff wird dabei in einem engen "Schlauch" von ca. 100 Å Durchmesser so hoch erhitzt, daß die Beweglichkeit der Gitteratome einem kurzzeitigen Aufschmelzen entspricht, wobei dieser Vorgang in nicht-elektronenleitenden Kristallen von besonderer Bedeutung ist /73/.

Porenwandern kann aber auch über Verdampfungs-Kondensations-Prozesse erfolgen. Verdampfen von Brennstoff an der heißen Seite einer Pore und Niederschlag an der kalten Seite führt zu einem Materietransport mit dem Temperaturgradienten und einem entsprechenden Porenwandern in Richtung auf die Brennstoffmitte. Solche Effekte treten vorzugsweise bei höheren Temperaturen und ausgeprägten Gradienten auf, weshalb sie vor allem für Oxidbrennstoffe in schnellen Reaktoren relevant sind. Durch Akkumulieren der Poren in der Brennstoffmitte kommt es hier zur typischen Zentralkanalbildung. Bei Karbiden ist dagegen wegen des flachen Temperaturgradienten kaum Porenwandern zu erwarten, zumal hier wegen der schnellen, weiten Energieausbreitung durch die freien Elektronenwolken die lokalen Überhitzungen in der Umgebung der Spaltfragmentbahn wesentlich niedriger sind; Experimente zeigen /61/, daß Poren in Karbiden meist nur kurze Wege zurücklegen und dann wieder zum Stillstand kommen. Dieses unterschiedliche Verhalten spiegelt sich naturgemäß auch in den entwickelten Modellen wider, die für LWR-Bedingungen eine Beschränkung auf thermisch- und bestrahlungsinduziertes Nachsintern ermöglichen (vgl. /58/), für Schnellbrüter-Oxidbrennstoff die Porenwanderung zum Zentrum als wichtigsten Einfluß beschreiben, für Karbidbrennstoff hingegen die Behandlung von Porenschrumpfen und - wegen der relativ großen Mengen zurückgehaltener Spaltgase - vor allem auch von Spaltgasporen verlangen. Einen Überblick über Modelle (/56, 58, 60, 62, 67, 70, 74/) gibt Tabelle 2. Keines dieser Modelle ist in der Lage, Kurzzeit-Effekte während eines schnellablaufenden Störfalles zu beschreiben; die aus der quasi-stationären Bestrahlung ermittelten Werte bleiben während eines Sekunden-Störfalles praktisch unverändert (Ausnahme: Többe /62/).

Je nach Betriebszustand (Spaltrate, Temperatur, Abbrand), aber auch stark abhängig vom Herstellungsprozeß (Sinteremperatur, -dauer, sinteraktive Zuschlagstoffe) tragen die genannten Effekte in unterschiedlicher Größenordnung zur Porositätsänderung bei. Durch entsprechende Berücksichtigung bei der



Herstellung läßt sich in gewissen Grenzen ein erwünschtes Verhalten bei gegebenen Randbedingungen voreinstellen, wobei in erster Linie weitgehende Volumenkonstanz durch gegenseitige Kompensation der Schwell- und Nachsinterprozesse angestrebt wird /75/. Man spricht dann von "stabilisiertem" Brennstoff, der beispielsweise durch langes Sintern bei hohen Temperaturen einen geringen Anteil kleiner (schnellauflösender) Poren, jedoch durch Beimischen von Porenbildern genügende Mengen großer (langsamauflösender Poren) enthält.

Modell	Többe	Aßmann und Stehle	Ainscough	Nichols /56/, Elbel u. López-Jiménez /67, 70, 74/
berücksicht. Effekt	/62/	/58/	/60/	
Porenerzeugung	nein	ja	nein	indirekt über Gasblasenerzeugung
Porenwachstum	nein	ja	ja	nein
Porenvernichtung	globale Behandlung,	ja	nein	globale Behandlung,
Porenschrumpfen	Einfluß: Zeit	ja	ja	Einfluß: Zeit
Porenwandern	globale Behandlung, oberhalb 1250 °C	nein	nein	ja
Zentralkanalbildung	fallen Porenanteile in den Zentralkanal	nein	nein	ja
Gasblasenverhalten	nein	ja	nein	Gasblasenwandern
transient anwendbar	nein	ja	ja	ja

Tabelle 2: Merkmale verschiedener Modelle für Oxid-Brennstoffe

### 3.2.1.1 Modelle zur Beschreibung der Poren-Einflüsse

Die beschriebenen Abläufe lassen sich gut als Diffusionsprozesse abbilden. Mit Hilfe der Vorstellung von einer schmelzflüssigen Zone um die Spaltfragmentspur ermitteln Aßmann und Stehle /58/ unter Zugrundelegung des Selbstdiffusionskoeffizienten von geschmolzenem Metall und aus dem Verhältnis des "geschmolzenen" Volumens zum Gesamtvolumen des betrachteten Kristalls einen strahleninduzierten Leerstellendiffusionskoeffizient  $D^{irr}$ , der vor allem im Bereich niedriger Temperaturen relevant ist. Mit der Annahme, daß der Porenradius klein ist gegenüber dem Kornradius, läßt sich so vereinfachend schreiben:

$$\frac{dr}{dt} = - (D_v^{th} + D_v^{irr}) (C_i - C_T) \cdot \frac{1}{r} \quad (38)$$

- mit  $r$  : Porenradius  
 $D_v^{th}$ ,  $D_v^{irr}$  : thermischer, bestrahlungsabhängiger Leerstellendiffusionskoeffizient  
 $C_T$  : thermische Leerstellenkonzentration an der Senke  
 $C_i$  : Gleichgewichtskonzentration der Leerstellen nahe der Porenoberfläche

Die Verdichtung sehr feiner Poren wird wie folgt abbrandabhängig beschrieben:

$$\left( \frac{\Delta V}{V} \right)_f = f^* \cdot P_{0,f} \cdot (1 - \exp(-\eta^* \cdot \Omega_s \cdot F \cdot t)) \quad (39)$$

mit  $P_{O,f}$  : Anfangsfeinporosität  
 $F$  : Spaltrate  
 $\Omega_s$  : Volumen der "Fission Spikes"  
 $f^*$  : Modellparameter,  $f^* \approx 1$   
 $\eta^*$  : Modellparameter,  $\eta^* \approx 0.25 \cdot 10^{-3}$

Zu relativ ähnlichen Ergebnissen kommen andere Autoren (z.B. /59, 62, 71/) mit einer empirischen, an Hand von experimentellen Ergebnissen zu eichenden Formel, ohne Porengröße und -verteilung explizit zu berücksichtigen und ohne Berücksichtigung unterschiedlicher Temperaturbereiche:

$$P = (1 - C_1) \cdot P_1 + C_1 \cdot P_0 \cdot \exp(-BU/A_1) \quad (40)$$

mit  $A_1$  : Parameter (typisch: 0.25-1.5% Abbrand für Oxide, bis 4% für Karbide)  
 $C_1$  : Parameter (typisch: 0.35-0.6)  
 $P_1$  : Parameter (typisch:  $\approx P_0$ )  
 $P_0$  : Herstellungsporosität  
 $BU$  : Abbrand in %

Porenwanderung über Verdampfungs-Kondensations-Mechanismen läßt sich ebenfalls als Diffusionsvorgang beschreiben /56/:

$$v = \frac{D}{R \cdot T} \cdot f_p \quad (41)$$

mit  $v$  : Wandergeschwindigkeit  
 $D$  : Diffusionskonstante  
 $f_p$  : treibende Kraft

Der Quotient  $\frac{D}{R \cdot T}$  beschreibt die Porenmobilität,  $f_p$  gibt den Einfluß des Temperaturgradienten wieder. Die umfangreiche Herleitung dieser Größen (vgl. /56, 57, 74, 76/) berücksichtigt die Einflüsse des Teilchenflusses in der Pore, die Teilchensprungfrequenz, die Transportwärme und den Dampfdruck in der Pore. Zur Vereinfachung wurde eine kugelförmige Pore im unendlichen Kristall angesetzt. Man erhält so als handliche Endgleichung unter Zusammenfassung aller Konstanten die Porenwandergeschwindigkeit

$$v = \gamma' \cdot D_g \cdot \frac{1}{T^{5/2}} \cdot \frac{dT}{dx} \cdot \exp\left(-\frac{Q_v}{RT}\right) \quad (42)$$

- mit  $\gamma'$  : Konstante  
 $D_g$  : Diffusionskonstante des Gases in der Pore  
 $T$  : Temperatur  
 $x$  : Koordinate  
 $Q_v$  : Verdampfungswärme  
 $R$  : allgem. Gaskonstante

Temperatur und Temperaturgradient bestimmen also die Wandergeschwindigkeit. Charakteristisch für den radialen Verlauf der Wandergeschwindigkeit ist dabei, daß das Geschwindigkeitsmaximum außerhalb der Stabmitte liegt, was auf den zum Zentrum hin abflachenden Temperaturgradienten zurückzuführen ist. Die erhaltene Wandergeschwindigkeit läßt sich leicht als Porositätsverlust je Zeitschritt in einer diskreten Ringzone schreiben und bereitet programmtechnisch keine Probleme.

Ähnlich wie bei der Betrachtung des Porenschrumpfens ergibt sich wieder eine interessante Analogie zu empirischen Gesetzen, die aus Experimenten abgeleitet wurden. Clement /77/ erhält ein identisches Gesetz, Sens /65/ einen geringfügig komplizierteren Ansatz, in dem die Konstanten zu temperaturabhängigen Größen werden. Elbel und López-Jiménez /66/ führen zusätzlich eine Abhängigkeit der Wandergeschwindigkeit von dem Stöchiometrieverhältnis ein. Trotz der von den verschiedenen Autoren in Übereinstimmung hergeleiteten Funktion ergeben sich beim Einsetzen der vorgeschlagenen Konstanten Abweichungen bei der Wandergeschwindigkeit um mehrere Größenordnungen.

Einen wesentlich einfacheren Ansatz zur temperaturinduzierten Porenwanderung gibt Többe /62/, der den Brennstoff in 3 typische Strukturzonen unterteilt (vgl. 3.3.2) und diesen Zonen 3 unterschiedliche Porositäten fest zuweist. Zur Berücksichtigung der Zeitabhängigkeit des Wandervorganges wird dann eine temperaturabhängige Relaxationszeit  $\tau$  eingeführt.

$$\tau = \tau_0 \cdot \exp(-\Delta F / R \cdot T) \quad (43)$$

mit  $\tau_0$  : Konstante

$\Delta F$  : freie Aktivierungsenergie der  
Brennstoffselbstdiffusion

### 3.2.1.2 Diskussion der Poren-Modelle

Die beschriebenen Modelle wurden im Rahmen eigener Brennstab-Modellrechnungen getestet und auf ihre Verwendbarkeit für Störfallanalysen hin untersucht. Dabei treten unmittelbar Probleme auf:

- In der Regel ist nicht bekannt, wie eine Überlagerung der thermischen und bestrahlungsinduzierten Nachverdichtung vorzunehmen ist, ohne die Modelleichungen zu verletzen.

- Modelleichungen sind bis dato nur an stationären und quasi-stationären Bestrahlungen vorgenommen worden.
- Die Zeitkonstanten der Modelle sind so groß, daß während Störfallabläufen im Sekundenbereich keine Veränderungen beschrieben werden (Ausnahme: Többe /62/ nimmt oberhalb  $1700^{\circ}\text{C}$  unendlich schnell ablaufende Vorgänge an, die während Transienten naturgemäß zu ebenso problematischen Ergebnissen führen).
- Eingabedaten für komplizierte Modelle sind nicht erhältlich.
- Der Schwankungsbereich der vorgeschlagenen Parameter überdeckt einen erheblichen Bereich.
- Spannungs- und hotpressing-Einflüsse sind nicht berücksichtigt.

Diese Probleme sollen kurz näher beschrieben werden, wobei mögliche Vorschläge zur Lösung gemacht werden.

Die parallele Anwendung von Porenschrumpf- und Porenwandermodellen darf nicht unabhängig erfolgen. Es liegt auf der Hand, daß aus Gründen der Massenkonstanz, aber auch der Kinetik der Modelle, eine durch den einen Prozeß dem betrachteten Volumen entzogene Porosität dem zweiten nicht mehr zur Verfügung steht. Außerdem müssen Modelleichungen, die die gesamte Porositätsänderung eines Brennstoffes mit nur einem Prozeß beschreiben, nicht unbedingt mehr gültig sein. Gleichung (40) beispielsweise impliziert nicht von vorneherein, daß sie in Kombination mit Porenwanderprozessen zu verwenden ist. Autoren, die nur an einer handlichen Formel zur Beschreibung der mittleren abbrandabhängigen Porositätsänderung interessiert sind, kommen zwangsläufig zu anderen Parametern als bei kombinierter Betrachtung. Da der Einfluß der bestrahlungsabhängigen Verdichtung experimentell nicht leicht vom Prozeß des Spaltproduktschwellens zu trennen

ist, dürfen die ermittelten Konstanten nur in Kombination mit einem Gesetz zum Brennstoffschwellen gesehen werden. Über diese Kombination liegen jedoch kaum Informationen vor. Fehlende Berücksichtigung von hotpressing-Einflüssen kann hilfsweise in den Modellen zum Gasblasenschwellen berücksichtigt werden, wie in Kapitel 3.4.3.1 vorgeschlagen.

Einfache Vergleichsrechnungen zeigen, daß für mittlere Stablängenleistungen und Zentraltemperaturen im Bereich 1700-2200°C die Verdichtungsgeschwindigkeiten nach Hoffmann /70/ und Elbel und López-Jiménez /67, 74/ vergleichbar sind, während die Geschwindigkeiten nach Sens /65/ erheblich niedriger und nach Clement /77/ erheblich höher liegen.

Eigene Untersuchungen der beschriebenen Modelle und Vergleich mit veröffentlichten experimentellen Befunden (z.B. /78/) ergaben, daß mit den Parametern von Hoffmann und Elbel und López-Jiménez das Bestrahlungsverhalten gut wiedergegeben werden kann, während die anderen Modelle in der Kinetik der Verdichtung und im Umfang der Porositätsänderung deutlich abweichen. Dies und die in Kapitel 4 vorgestellten Ergebnisse bestätigen die Auswahl des Modelles nach /67, 70, 74/ mit

$$v_p \left[ \frac{\text{mm}}{\text{h}} \right] = 2.115 \cdot 10^{11} \cdot \exp\left(-\frac{68200}{T}\right) \cdot \frac{dT}{dx} \cdot \frac{1}{T^{5/2}} \cdot 360000 \quad (44)$$

$$v_g \left[ \frac{\text{mm}}{\text{h}} \right] = 2.426 \cdot 10^{10} \cdot \exp\left(-\frac{68200}{T}\right) \cdot \frac{dT}{dx} \cdot \frac{1}{T^{5/2}} \cdot 360000 \quad (44')$$

mit  $v_p$  = Wandergeschwindigkeit Herstellungsporen (He)

$v_g$  = Wandergeschwindigkeit Spaltgasporen (Xe+Kr)

$\frac{dT}{dx}$  = Temperaturgradient in K/mm

Wie später gezeigt wird (Kapitel 3.3.2), stimmt die aus dieser Porenwanderung abgeleitete Umstrukturierung in mehrere Gefügezonen ebenfalls gut mit experimentellem Material überein. Unter Verwendung von diesen Parametern wurde nun eine Kombination mit bestrahlungsabhängigen Gesetzen durchgeführt. Abb. 10 zeigt typische radiale Porositätsprofile, die sich infolge der Porenwanderung nach etwa 20-50 Bestrahlungsstunden ausgebildet haben. Die charakteristische Abnahme der Porosität im Zentrum und die Zentralkanalbildung sind gut zu erkennen. Abbrandabhängige Verdichtungseffekte können zwangsläufig nur noch die äußeren (kalten) Bereiche beeinflussen. Werte von  $A_1 = 1\%$ ,  $C_1 = 0.5$  und  $P_1 = P_0$  (für Oxide) für Gleichung (40) führen hier zu vernünftigen Ergebnissen. Sie werden zudem von allen Autoren als möglich anerkannt. Durchgeführte Rechnungen bestätigen diese Auswahl.

Das Verhalten bei schnellen Transienten ist wegen der endlichen Porenwanderingeschwindigkeit problemlos. Es werden wegen der großen Zeitkonstanten praktisch keine Porositätsänderungen im Sekundenbereich ermittelt. Inwieweit dies mit Experimenten übereinstimmt, muß allerdings noch geklärt werden, sobald entsprechende Ergebnisse für Kurzzeit-Transienten zugänglich sind.

Rechnungen bis zu hohen Abbränden unter quasi-stationären Bedingungen zeigen gute Resultate im Vergleich mit dem Experiment. Durch die Einlagerung von Gasblasen und das zugehörige Schwellen des Brennstoffes ist hier eine Erhöhung der Porosität im zentralen Bereich durchaus möglich. Abb. 11 zeigt einen typischen Porositätsverlauf bei höherem Abbrand, wobei die zentrale Porosität infolge der Berücksichtigung von Gasblasenerzeugung und -wanderung wieder leicht angestiegen ist. Dieser Effekt wird im Modell durch die schon diskutierte temperaturgradientabhängige Lage des Geschwindigkeitsmaximums der Porenwanderung außerhalb der Stabmitte erzielt.



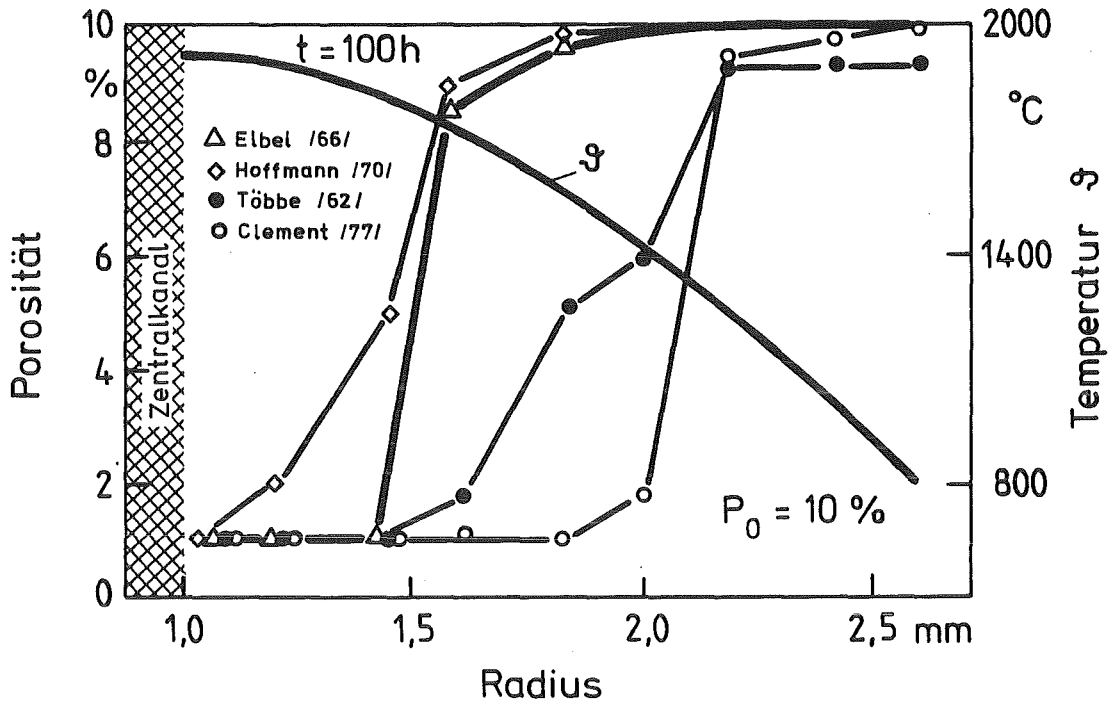


Abb. 10: Die Sinterporosität nach verschiedenen Modellen, Porenwandermodelle ohne bestrahlungsinduziertes Nachsintern, quasi-stationäre Bedingungen.

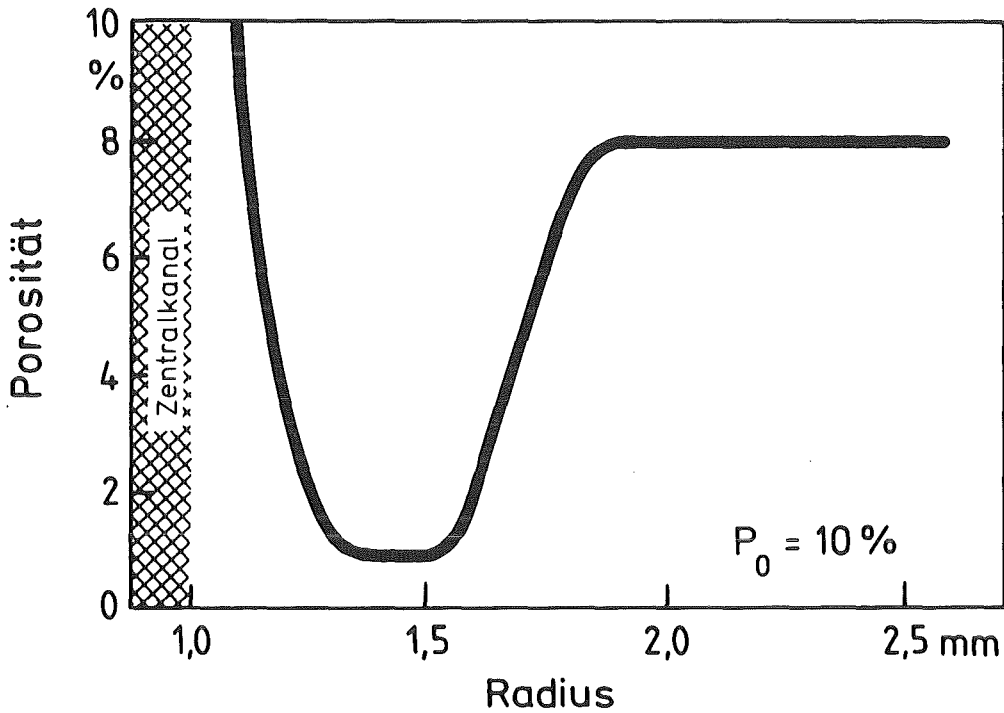


Abb. 11: Qualitativer Verlauf der Porosität bei höherem Abbrand unter Berücksichtigung von bestrahlungsinduziertem Verdichten am Rand und Gasblasen im Zentrum.

Eine kurze Anmerkung gilt dem Modell nach Aßmann und Stehle. Der Vorteil dieses physikalisch fundierten Modells, das an einer erheblichen Anzahl Experimente geeicht ist, und das als einziges eine Porengrößenverteilung berücksichtigt, kehrt sich in den gravierenden Nachteil, wenn man konstatieren muß, daß solche Verteilungen in aller Regel - von LWR-Standardbrennstoffen einmal abgesehen - nicht bekannt sind. Für keine der in den letzten 5 Jahren durchgeführten URANUS-Rechnungen zu Brennstabexperimenten konnten solche Daten zur Verfügung gestellt werden. Trotz der Vorzüge kommt es deshalb für die Anwendung im Schnellbrüter-Bereich nicht ohne weiteres in Frage, obwohl es bei Verwendung aller 4 Temperatur-Regionen geeignet erscheint.

### 3.3.1.3 Programmtechnik

Einige kurze Anmerkungen seien zur rechentechnischen Behandlung der Porenwanderung gemacht. Bei einer radialen Diskretisierung in mehrere dünne Zylinderschalen muß für jede Zone der Zustrom aus bzw. der Abstrom von Poren in Nachbarringe behandelt werden. Hierbei muß gefordert werden, daß von einer betrachteten Pore in einem Zeitschritt  $\Delta t$  nicht mehr Zonen als zugelassen durchlaufen werden, da dies die Porenbilanz verletzen würde. Eine wandergeschwindigkeits-abhängige Zeitschrittsteuerung kann dieses Problem leicht beheben.

Die nach innen gewanderten Poren bilden in der Mitte des Brennstoffes den Zentralkanal. Der Brennstoff ändert damit seine Geometrie vom ursprünglichen Vollpellet zum Hohlzylinder. Dies muß bei der mechanischen Behandlung berücksichtigt werden, wobei eine spezielle Übergangsbeziehung nötig ist, um zu große Krümmungen bei sehr kleinen Radien zu vermeiden. Zweckmäßigerweise führt man den Zentralkanal erst ab einer Mindest-Größe ein; für URANUS wurde 0.1 mm Radius als sinnvoll gewählt, weil keine mechanischen Probleme auftauchen, andererseits dieser kleine Radius noch keinen Beitrag zur Temperaturabsenkung im Zentrum liefert. Die eigentliche Geometrieänderung erfolgt unter der Annahme von Massenkonstanz in den betrachteten Ringzonen. Unter Annahme eines

Bezugsradius, der keine Radiusänderung durch Porenwanderung erfahren möge, lassen sich so die übrigen Zonen entsprechend nachziehen.

Als wesentlicher Parameter dieses Modells muß deshalb die Festlegung des Bezugsradius angesehen werden. In Übereinstimmung mit Többe /62/ wurde der Außenradius des Brennstoffes als Referenz angenommen, was aufgrund der dort sehr niedrigen Wandereschwindigkeit naheliegend, aber nicht unbedingt selbstverständlich ist. Liegt der Bezugsradius weiter innen, so ergeben sich ein kleinerer Zentralkanal und ein größerer Spalt zwischen Hülle und Brennstoff. Im Vergleich mit Experimenten muß also nicht nur der Zentralkanalradius, sondern auch der errechnete Außenradius kritisch betrachtet werden. Die in Kapitel 4 vorgestellten Ergebnisse stützen die Annahme des Außenradius als Bezugspunkt allerdings durchaus ab.

In der Literatur /66, 67, 70/ existieren noch andere Methoden der Zentralkanalberechnung, die eine Umdefinition von radialen Zonen zu einer Zentralkanalzone vornehmen, wenn die Porosität einen gewissen Grenzwert (z.B. 50%) überschreitet. Die rechnerisch in dieser Zentralzone verbliebene Masse wird dann der nächst-äußeren Zone unter Verschiebung deren Innenradius zugeschlagen. Diese Methode ist von der gewählten Diskretisierung abhängig, stört durch die zeitabhängige Variation der Anzahl der radialen Punkte die numerische Behandlung, und ist durch die etwas willkürliche Festsetzung der Grenzporosität problematisch. Sie wird deshalb nicht weiter verfolgt.

### 3.3.2 Gefüge-Änderungen

Mit der thermisch induzierten Veränderung der Porosität während der ersten 20-50 Bestrahlungsstunden bildet sich ein typisches Gefüge im Brennstoff aus, das bei Oxiden durch 3 Zonen plus Zentralkanal, bei Karbiden durch 4 Zonen beschrieben wird /61, 62/.

Von außen nach innen können sie wie folgt beschrieben werden:

- Zone IV: Fabrikationsstruktur. Kein Kornwachstum, nur langsames bestrahlungsabhängiges Porenschrumpfen. Kaum Spaltgasfreisetzung, praktisch kein Gasblasenswellen.
- Zone III: Regellooses Kornwachstum; u.U. etwas ausgerichtet durch Porenwanderung. Hohe Porenkonzentration an den Korngrenzen, geringe Porenmobilität. Mittlere Spaltgasfreisetzung, Gasblasenniederschlag, Gasblasenwachstum.
- Zone II: Säulenornwachstum (Stengelkristalle) durch Neuordnung der Poren auf den Korngrenzen in Richtung des Temperaturgradienten. Hohe Spaltgasfreisetzung, jedoch noch Gas in den Körnern.
- Zone I: Oxid: Zentralkanal  
Karbid: Große Poren, hohe Porosität, nahezu vollständige Gasfreisetzung. Manchmal Zentralkanalbildung.

Je nach Herstellung (z.B. Porosität, Korngröße) und Betriebszustand werden die Grenzen dieser Zonen unterschiedlich liegen; sehr niedrig belastete Stäbe zeigen u.U. nur die Zonen IV und III, während bei sehr hoch belasteten Stäben die Zone IV vollständig verschwinden kann. In erster Näherung lassen sich die Zonenübergänge durch Temperaturgrenzen beschreiben. Nach Többe /62/ fällt die Grenze IV/III bei Temperaturen zwischen  $1250^{\circ}\text{C}$  und  $1400^{\circ}\text{C}$  in etwa mit dem Übergangsbereich von sprödem zu plastischem Verhalten zusammen; von  $1400 - 1600^{\circ}\text{C}$  wird Zone III angenommen. Im Bereich  $1600 - 1700^{\circ}\text{C}$  liegt der Übergang zur Säulenornzone II, zusammenfallend mit dem deutlichen Überhandnehmen von thermisch aktivierter Porenwanderung. Durch Zuweisen von definierten Porosi-

täten (Zone IV:  $P = P_0$ , Zone III:  $P = 0.05$ , Zone II:  $P = 0.01$ ) mit stetigen Übergängen entsteht so ein leicht handhabbares kombiniertes Struktur/Porositätsmodell, das für stationäre Verhältnisse und mittlere Leistungen unter Verwendung der temperaturabhängigen Beziehung für die Relaxationszeit (Gl. (43)) gute Ergebnisse liefert /79/. Sowohl die festen Temperaturgrenzen als die festgesetzte minimale Porosität von 1% im Hochtemperaturbereich sind jedoch unbefriedigend. Statt der festen Temperaturschranken geben einige Autoren (z.B. /7, 61, 60, 69, 72/ zeit- oder abbrandabhängige Funktionen an, die jedoch deutlich streuen. Korreliert man die unterschiedliche Ausrichtung der Körner in Zone II und III mit der Wanderung der Poren im Temperaturgradienten, so ergibt sich ein Zonenübergang in Abhängigkeit von dem zurückgelegten Weg der Poren. Umfangreiche Analysen experimentellen Materials aus FR-2 Kapselbestrahlungen (vgl. López-Jiménez u. Elbel /74/) zeigten im Oxidbrennstoff, daß Regionen, in denen die errechnete Wanderweglänge von Poren etwa 300  $\mu\text{m}$  überschreitet, in den Bereich der Stengelkristallzone fallen. Da die Wandergeschwindigkeit in diesem Bereich hoch ist, ist die Festlegung dieser Grenze unproblematisch.

Aus den gleichen Untersuchungen wurde die Grenze für den Übergang Zone IV - III in Abhängigkeit von der Korngröße mit einem auf 25  $\mu\text{m}$  angewachsenen Korn bestimmt.

Für Karbid-Brennstoff wurde für den Zonenübergang IV/III eine abbrandabhängige Temperaturgrenze und für den Zonenübergang III/II eine temperatur/temperaturgradientabhängige Grenze, beide nach Blank et al. /61/, übernommen.

Als letzter Punkt zur Beschreibung der Gefügeänderung bleibt noch das Kornwachstum zu behandeln. In der Literatur gibt es eine Reihe von Modellen, die entweder auf experimentellen Ergebnissen, oder auf der Arbeit von Nichols /57/ basieren. Nach Nichols besteht ein direkter Zusammenhang zwischen Kornwachstum und Porenverhalten, weil sich infolge der Porenwanderung entlang

der Korngrenzen das Korn streckt. Unter typischen Annahmen von kugelförmigen Poren und Porenwachstum proportional dem Kornwachstum ergeben sich Gleichungen folgenden Typs für die Korndurchmesseränderung:

$$d^n - d_0^n = k \cdot \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \cdot t^m \quad (45)$$

mit  $d$  : Korndurchmesser  
 $d_0$  : Anfangs-Korndurchmesser  
 $k$  : Konstante  
 $Q$  : Aktivierungsenergie  
 $t$  : Zeit

Für den Exponenten  $n$  werden Werte von 3, 4 oder 5 genannt, je nachdem, ob als treibende Kraft Volumendiffusion, Oberflächendiffusion oder Verdampfungs-Kondensationsprozesse angesehen werden. Wie schon in 3.3.1 gezeigt, dominieren im Falle der Porenwanderung die Verdampfungs-Kondensationsprozesse. Der Exponent  $m$  wird von den meisten Autoren zu 1 gesetzt. Damit ergeben sich große Zeitkonstanten, so daß für schnellablaufende Störfälle keine Veränderungen der Korngröße ermittelt werden. Dieser Punkt kann - wie bei den Porenmodellen - erst nach Vorlage entsprechender Experimente geklärt werden. Tabelle 3 zeigt eine Auswertung der Wachstumsgrenze verschiedener Autoren für unterschiedliche Bedingungen; die Übereinstimmung mit experimentellen Daten für quasi-stationäre Bedingungen nach Olsen /80/ ist sehr befriedigend. Für URANUS wurde die Formel nach MATPRO /72/ übernommen

$$d^4 - d_0^4 = 6.18 \cdot 10^{13} \cdot \exp\left(-\frac{46524}{T}\right) \cdot t \quad (46)$$

Temperatur (°K)	Anfangskorn- größe $d_0$ (µm)	Zeit (h)	Korngröße $d$ (µm)					
			Olsen /80/ V-K Prozeß	Olsen /80/ Oberfl.Diff.	Ainscough /63/ $d_{max}$	Ainscough /63/	Olsen/80/ Meßwert	Elbel /67/
1573	3	1500	10,75	3,25	17,56	11,05	7	9,75
1573	4	1500	10,78	4,15	17,56	11,20	6	9,88
1573	5	1500	10,86	5,10	17,56	11,38	10	10,08
1873	3	14	10,92	4,06	38,15	7,34	17	9,10
1873	4	14	10,95	4,70	38,15	7,75	21	9,25
1873	5	14	11,02	5,48	38,15	8,26	10	9,48
1873	3	48	14,84	5,47	38,15	12,16	22	13,61
1873	4	48	14,86	5,86	38,15	12,38	21	13,68
1873	5	48	14,89	6,40	38,15	12,65	21	13,79
1973	3	48	20,33	9,16	46,88	17,94	33	20,16
1973	4	48	20,33	9,31	46,88	18,07	23	20,19
1973	14	48	21,38	15,16	46,88	21,43	18	22,18
1973	5	48	20,35	9,54	46,88	18,25	35	20,24
1973	22	48	25,23	22,50	46,88	26,28	23	26,60
Standardabweichung			6,364	13,00		7,614		6,951
Abweichung Mittelwert			-3,536	-11,20		-5,06		-4,215
Die Werte nach Olsen /80/ sind - da die Gleichungen identisch sind - diesselben wie nach MATPRO /72/								

- 61 -

Tabelle 3: Vergleich Messungen und Rechnungen von Korngrößen, Messungen nach Olsen /80/ ; Standardabweichung und Abweichung Mittelwert bezogen auf exp. Messungen.

Nach dieser Formel würden Körner u.U. jedoch ins Unendliche wachsen. Unter Verwendung des Gesetzes von Ainscough /60/ zur Berechnung der maximalen Korngröße läßt sich eine vernünftige Begrenzung formulieren:

$$d_{\max} = 2.23 \cdot 10^3 \cdot \exp\left(-\frac{7620}{T}\right) \quad (47)$$

Diese Maximalwerte sind ebenfalls in Tabelle 3 aufgelistet.

Auch andere Autoren haben eine Korrelation der Porositätsabnahme mit dem Kornwachstum durchgeführt. Für  $UO_2$  unter LWR-Bedingungen wird dies beispielsweise von Aßmann und Stehle /58/ gezeigt.



### 3.4 Zusammenstellung von Daten und Modellen zum Karbid-Brennstab

Aus einer Reihe von Gründen ist man seit einigen Jahren daran interessiert, in schnellen natriumgekühlten Reaktoren (SNR, LMFBR) neben dem klassischen Oxid-Brennstab das Konzept fortgeschrittener Brennstoffe (advanced fuel) zu verwirklichen. In diese Gruppe gehören alle nichtoxidischen Brennstoffverbindungen, die kurz als "MX-type-fuel" bezeichnet werden:

Uran -	}	Karbid
Plutonium -		Nitrid
Thorium -		Karbonitrid
Misch		Silizid
		Sulfid

Diese Brennstoffe werden in der Regel ebenso wie die Oxide als keramische Sinterkörper oder rüttelverdichtet (vibrocompact) eingesetzt, unterscheiden sich aber in wesentlichen Punkten von den Oxiden /81/. So läßt beispielsweise die den Karbiden eigene Kombination hoher Metalldichte mit sehr guten Wärmeleiteigenschaften eine erhebliche Steigerung der spezifischen Leistung (Wärmequellendichte) zu, ohne zu zentralem Schmelzen zu führen; in experimentellen Bestrahlungen wurden Stablängenleistungen bis zu 2000 Watt/cm erzielt gegenüber 500 Watt/cm bei Oxidstäben. Die höhere Schwermetалldichte führt zu kompakteren Reaktorkernen, wodurch - trotz der höheren Spaltstoffdichte - auch das Brutstoff/Spaltstoffverhältnis günstiger wird. Durch den Ersatz von O<sub>2</sub> durch C sinkt der Moderatoranteil in der Brennstoffverbindung, was zu einem härteren Neutronenspektrum und damit einer höheren Brutrate führt /82, 83/. Bei Kühlmittelverluststörfällen wird erwartet, daß die Reaktivitätssteigerung wegen der höheren Dichte des Brutmaterials durch den Doppler-Effekt besser kompensiert werden kann /83, 84/. Diese und weitere Vorteile, beispielsweise die chemische Verträglichkeit mit Natrium, lassen die Verwendung fortgeschrittener Brennstoffe für zukünftige Reaktoren aussichtsreich erscheinen, wengleich eine Reihe von Problemen (hohe Schwellrate, chemische Wechselwirkung mit der Hülle) die Anwendung erschweren. Uran-Karbid UC und Uran-Plutonium-Karbid (U,Pu)C sind die am besten erforschten Brennstoffe

aus dem Gebiet der MX-type-fuel und erscheinen für den Einsatz in zukünftigen schnellen Brutreaktoren als besonders geeignet. Dabei werden Konzepte mit Helium- und Natrium-Bindung diskutiert. Eine erhebliche Anzahl von Experimenten ist ausgewertet und in der Literatur beschrieben, wenngleich auch - verglichen mit dem Kenntnisstand bei den Oxiden - noch erhebliche Lücken bestehen.

Als erster Schritt zur Beschreibung des fortgeschrittenen Brennstoffkonzepts mit dem Stabrechenprogramm URANUS wurde deshalb die URANUS-Karbid-Variante entwickelt. Sie baut auf den zugänglichen Materialdaten der offenen Literatur auf, sowie auf aus diesen Daten abgeleiteten Modellen. Die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Daten wurden zum Teil früheren Arbeiten des Autors /85, 86/ entnommen. Ohne Zweifel sind noch Ergänzungen auf diesem Gebiet zu leisten, insbesondere sind die Ergebnisse neuerer Experimente und vor allem unter instationären Bedingungen gewonnene Daten einzubringen.

Im Gegensatz zu oxidischen Brennstoffen sind Angaben zu den Materialdaten der Karbide und Mischkarbide nach wie vor recht rar und zudem oft widersprüchlich. Häufig ist bei den Messungen nicht unterschieden in Ergebnisse für Karbid und Mischkarbid, einzelne Messungen liegen entweder nur für Karbid oder für Mischkarbid vor. Aus diesem Grunde wird UC und (U,Pu)C in der folgenden Darstellung gemeinsam behandelt. Soweit Unterschiede bekannt sind, werden diese deutlich hervorgehoben.

#### 3.4.1 Mechanische Eigenschaften

Karbid hat ein kubisch-flächenzentriertes Gitter vom Typ NaCl. Das hauptsächlich verwendete Uran-Monokarbid (Kohlenstoffgehalt 4,8 %) erfährt im festen Zustand keinerlei Gitterumwandlungen. Sein Schmelzpunkt liegt nach Steinkopff /87/ bei ca. 2315 °C, nach Nickerson et al. /88/ bei 2365 °C ± 165. Neben dem Monokarbid sind jedoch auch geringe Mengen von anderen Verbindungen (z.B. U<sub>2</sub>C<sub>3</sub>) im Brennstoff enthalten.

Für die Beurteilung des mechanischen Verhaltens (Verformungs-

und Bruchverhalten) werden Kenntnisse der mechanischen Festigkeits- und Zähigkeitswerte sowie der elastischen und plastischen Eigenschaften des Materials im interessierenden Temperaturbereich benötigt. Für UC und (U,Pu)C liegen nur wenige Angaben hierzu vor; Nickerson et al. /88/ geben beispielsweise nur für UC Daten an, nicht für (U,Pu)C, und im wesentlichen nur für niedrige Temperaturen. Die plastischen Eigenschaften bei hohen Temperaturen und das Verhalten beim Schmelzpunkt sind praktisch unbekannt.

### 3.4.1.1 Elastizitätsmodul E

Der Elastizitätsmodul von Kernbrennstoffen wird im wesentlichen von 5 wichtigen Parametern beeinflusst: Temperatur, Porosität, Stöchiometrie, Korngröße, Legierungszusammensetzung. Für UC und (U,Pu)C liegt kein Modell vor, das sämtliche Parameter berücksichtigt. Damit muß eine Einschränkung auf zumindest Temperatur- und Porositätsabhängigkeit hingenommen werden.

Ausführliches Material liegt in den Messungen von Padel und de Novion /89/, Matthews /90/, Gebhardt et al. /81/, Steiner /91/, Steinkopff /87/, Nickerson et al. /88/, Tokar, Hall (zit. bei Matthews /90/), Routbort et al. /82/ und anderen vor. Allerdings wird E häufig nur für Raumtemperatur angegeben, was für die Brennstabbedingungen unbefriedigend ist. Padel und de Novion geben temperatur- und porositätsabhängige Werte im Bereich 5 - 27 % Porosität an, die sich praktisch mit den Werten von Matthews (temperatur-, legierungs- und porositätsabhängig im Bereich 0 - 30 % Porosität) decken. Matthews hält den Einfluß von Stöchiometrie und Korngröße für gering und berücksichtigt ihn nicht weiter. Matthews' Gleichungen wurden übernommen, da sie für typische Porositäten (10-20%) auch der in /82/ gezeigten Forderung höherer Werte für Mischkarbid entsprechen:

$$\text{UC} \quad : \quad E = 215\,000 \cdot (1 - 2.3 \cdot P) \cdot (1 - 0.92 \cdot 10^{-4} \cdot (\vartheta - 25)) \quad (48)$$

$$\text{(U,Pu)C} \quad : \quad E = 202\,000 \cdot (1 - 1.54 \cdot P) \cdot (1 - 0.92 \cdot 10^{-4} \cdot (\vartheta - 25)) \quad (48')$$

E in MPa

$\vartheta$  in °C, experimentell abgesichert bis 1250 °C

P in /, experimentell abgesichert für  $P \leq 0.3$

Abb. 12 zeigt die sich ergebenden Kurven im Vergleich zu anderen Literaturangaben.

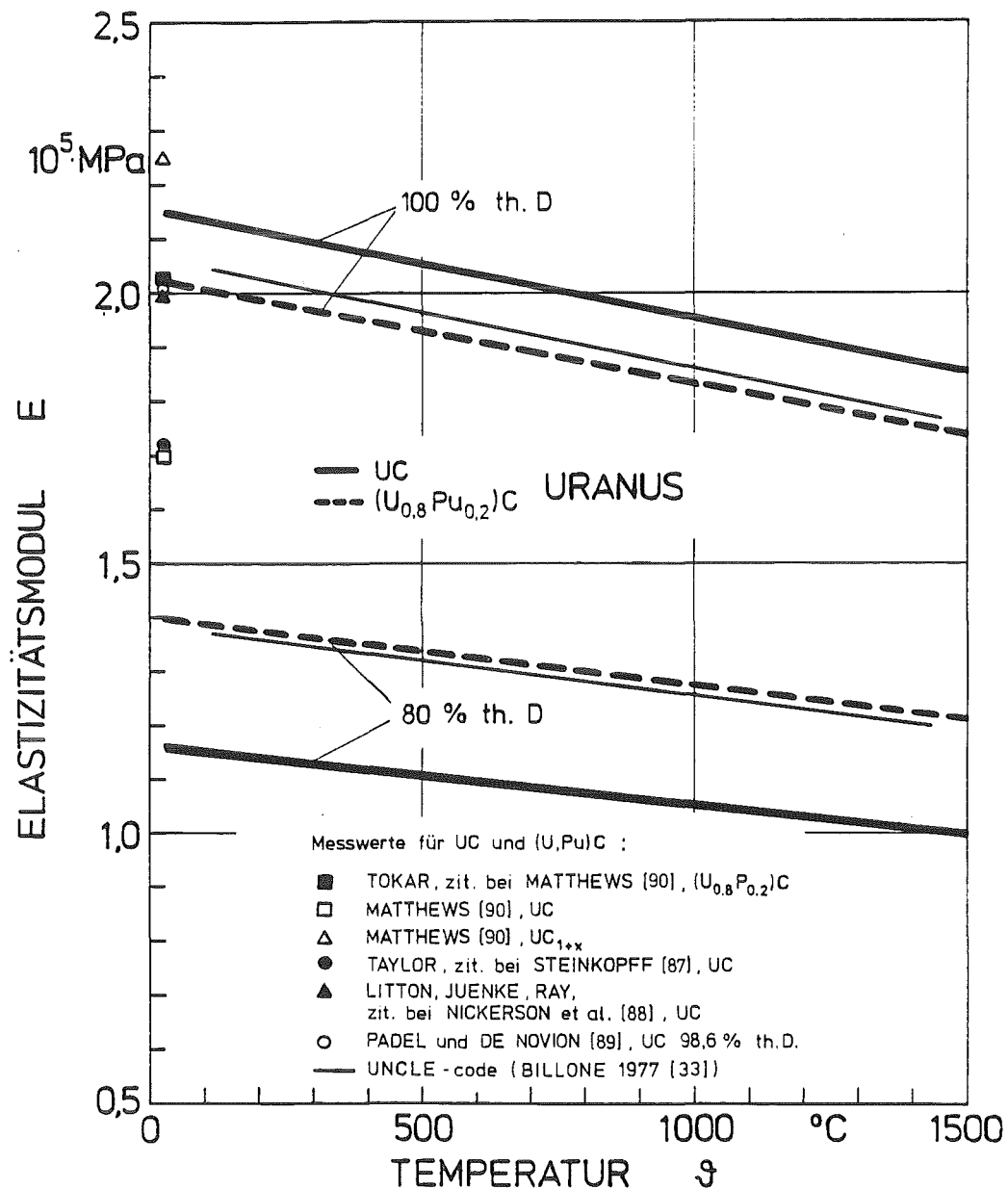


Abb. 12: E-Modul von UC und (U,Pu)C; Vergleich mehrerer Autoren; URANUS mit 100 % th.D. und 80 % th.D.

#### 3.4.1.2 Querkontraktionszahl $\nu$ (Poisson-Zahl)

Die Querkontraktionszahl  $\nu$  gibt das Verhältnis von Längs- zu Querdehnung an;  $\nu$  ist durch die Beziehungen der Mechanik direkt mit dem Elastizitätsmodul E und dem Gleitmodul G verknüpft und im wesentlichen von Temperatur und Struktur des Werkstoffes abhängig.

Padel und de Novion /89/ geben einen porositätsabhängigen Wert für  $\nu$  an, der an den gleichen Proben wie der E-Modul (Abschnitt 3.4.1.1) gemessen wurde und ebenfalls im Bereich 5 - 27 % Porosität gilt:

$$\nu = 0.288 - 0.286 \cdot P \quad (49)$$

P in [%], abgesichert von  $0.05 \leq P \leq 0.27$

Nickerson und Kastenbergh /88/ geben einen festen Wert an:

$$\nu = 0.288$$

Wegen der angestrebten Konsistenz in der Berücksichtigung der Porositätsabhängigkeit bei E und  $\nu$  wird die Gleichung von Padel und de Novion übernommen. Eine Temperaturabhängigkeit wird nicht beschrieben.

#### 3.4.1.3 Streckgrenze $\sigma_s$ und Bruchdehnung $\delta_b$

Die genaue Kenntnis von Streckgrenze  $\sigma_s$  und Bruchdehnung  $\delta_b$  ist für die Beschreibung der heißen Geometrie eine wichtige Voraussetzung; leider liegen hierzu nur wenige Literaturangaben über gemessene Größen vor. Die Streckgrenze  $\sigma_s$  gibt an, oberhalb welcher Spannungen nichtelastische, bleibende Verformungen auftreten. Die Bruchdehnung  $\delta_b$  gibt an, wie groß diese bleibenden Verformungen oberhalb der Streckgrenze werden dürfen, bis anstelle von Plastifizieren Reißen auftritt. Plastische Dehnungen und Reißdehnungen beeinflussen die Geometrie unmittelbar und haben damit deutlichen Einfluß auf Spaltweite und Temperaturniveau. Die Behandlung von Plastifizieren und Reißen im Rahmen der URANUS-Brennstabmechanik wird ausführlich in /4, 18/ beschrieben, so daß sich eine Diskussion des Verfahrens an dieser Stelle erübrigt.

Das Bruchverhalten keramischer Brennstoffe, also auch von Karbiden, wird in Abhängigkeit von der Temperatur in drei Bereiche eingeteilt:

- Niedrige Temperatur: Sprödes Verhalten, der Bruch geht von den

Herstellungsporen aus, die Bruchfestigkeit  $\sigma_b$  ist praktisch temperaturunabhängig.

- Übergangstemperatur: Abnahme der Bruchfestigkeit  $\sigma_b$  mit zunehmender Temperatur durch Änderung des Verformungsmechanismus (Bildung von Versetzungsrißkeimen).
- Hohe Temperatur: Die Bruchfestigkeit  $\sigma_b$  bleibt wieder konstant oder nimmt leicht ab mit zunehmender Temperatur. Duktiles Verhalten, d. h. es treten vor Eintreten des Risses plastische Verformungen auf. Hohe Bruchdehnung.

Nach Carniglia (zitiert von Matthews /90/) muß die Temperaturabhängigkeit in Zusammenhang mit dem Herstellungsverfahren (Korngröße) und der Stöchiometrie gesehen werden (Tabelle 4a):

	$\vartheta$ °C	25	600	800	1000	1200
UC <sub>1+x</sub> , geschmolzen		100	150	150	150	210
UC <sub>1-x</sub> , geschmolzen		210	180	100	35	
UC,	$\sigma_b$ MPa	100	100	95	110	150
UC, gesintert		207				

Tabelle 4a: Temperaturabhängigkeit der Bruchfestigkeit

Steinkopff /87/ gibt die Bruchfestigkeit von gesinterten Proben (90 % th. D) in Abhängigkeit von der Temperatur an (Tabelle 4b):

$\vartheta$ °C	25	800	1000	1200
$\sigma_b$ MPa	160	120	69	plast. Verform.

Tabelle 4b: Temperaturabhängigkeit der Bruchfestigkeit

Routbort et al. /82/ geben in einem Diagramm Werte für die Fließgrenze, die in vergleichbarer Größenordnung liegen.

Die Werte für metallreiches  $UC_{1-x}$  können von der Betrachtung ausgeschlossen werden, da in aller Regel kohlenstoffreicher Brennstoff eingesetzt wird (günstiges Schwellverhalten). Im interessierenden Temperaturbereich ist deshalb bis  $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$  eine Streckgrenze um  $100\text{ MPa}$  als experimentell abgesichert anzusehen (Carniglia zit. bei Matthews /90/). Unter Berücksichtigung der Ergebnisse von Steinkopff wird für URANUS formuliert:

$$\sigma_s \text{ [MPa]} = 9.81 (13 - 3 \cdot 10^{-3} \cdot \vartheta) ; \vartheta \text{ in } ^{\circ}\text{C} \quad (50)$$

Zur Berücksichtigung des extrem spröden Verhaltens im Tieftemperaturbereich und des steilen Überganges in den plastischen Hochtemperaturbereich wird die Bruchdehnung wie folgt definiert:

$$\begin{aligned} \delta_b \text{ [/]} &= 0 && \text{für } \vartheta < 1400\text{ }^{\circ}\text{C} \\ \delta_b \text{ [/]} &= \text{nicht relevant} && \text{für } \vartheta \geq 1400\text{ }^{\circ}\text{C} \end{aligned} \quad (51)$$

Variationen dieser Temperaturschranke im Bereich von  $1200 - 1400\text{ }^{\circ}\text{C}$  zeigen nur geringen Einfluß auf das geometrische Verhalten der Tablette, so daß die Aussage von Steinkopff /87/, ab  $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$  trete plastische Verformung auf, im Prinzip enthalten ist.

Wegen fehlender Angaben über Mischkarbid werden für UC die gleichen Formeln angesetzt.

#### 3.4.1.4 Dichte $\rho$ und Anteil schweres Metall $A_m$

Zur Berechnung des Abbrands und damit aller abbrandabhängigen Gesetze (Schwellen, Spaltgasfreisetzung) sowie zur Berechnung des Brennstabgewichtes (axiale Kräftebilanz) werden Daten über die Dichte  $\rho$  und den Metallanteil des Brennstoffes  $A_m$  benötigt. Nach Gebhardt et al. /81/ gilt

$$\rho \text{ [g/cm}^3\text{]} = 13.63 \quad \text{für UC} \quad (52)$$

$$\rho \text{ [g/cm}^3\text{]} = 13.6 \quad \text{für (U,Pu)C} \quad (52')$$

Der Anteil von U an UC wird mit  $12,97 \text{ g/cm}^3$  angegeben, woraus sich ein relativer Kohlenstoff-Anteil von 4,8 % ergibt; der Anteil des schweren Metalls wird entsprechend mit  $A_m = 0,952$  verwendet.

### 3.4.2 Thermische Eigenschaften

Der metallähnliche Aufbau der Karbide (Metall-Bindung mit freien Elektronen) führt zu sehr guten thermischen Eigenschaften. Die gegenüber den Oxiden sehr viel flacheren Temperaturgradienten erlauben deshalb eine wesentlich höhere spezifische Leistung, ohne in den Bereich der Schmelztemperatur zu gelangen. Allerdings liegt der Schmelzpunkt niedriger als bei den Oxiden.

#### 3.4.2.1 Wärmeausdehnungskoeffizient $\alpha$

Der Wärmeausdehnungskoeffizient  $\alpha$  gehört zu den relativ einfach bestimmbareren Größen, und so liegen hier eine Vielzahl von Ergebnissen vor. Wesentliche Einflußgrößen sind

- Temperatur
- Legierungszusammensetzung
- Stöchiometrie
- Herstellungsart (Struktur, Verunreinigungen).

Die Ergebnisse der Messungen differieren im allgemeinen, da unterschiedliche Meßmethoden, verschiedene Herstellungsverfahren und verschiedene Kohlenstoffgehalte verwendet werden. Typisch für die thermische Ausdehnung stöchiometrischer Karbide ist die Zunahme der Steigungen der Kurven mit zunehmender Temperatur. Nichtstöchiometrischer Brennstoff zeigt dagegen Abweichungen vom kontinuierlichen Verlauf, was durch die Phasenwechsel ( $\alpha$ - $\beta$ - $\gamma$ ) des freien Uran an den Korngrenzen erklärt wird /92/.

Abb. 13 zeigt einige der in der Literatur gefundenen Angaben (aus /81, 88, 92-96/). Die Gleichungen von Steiner und Elbel /95/ und von Caligara /94/ beschreiben die Temperaturabhängigkeit der Wärmeleitfähigkeit im interessierenden Bereich fast



übereinstimmend (max. Differenz der Angaben etwa 2 % bei 1500 °C) und in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen.

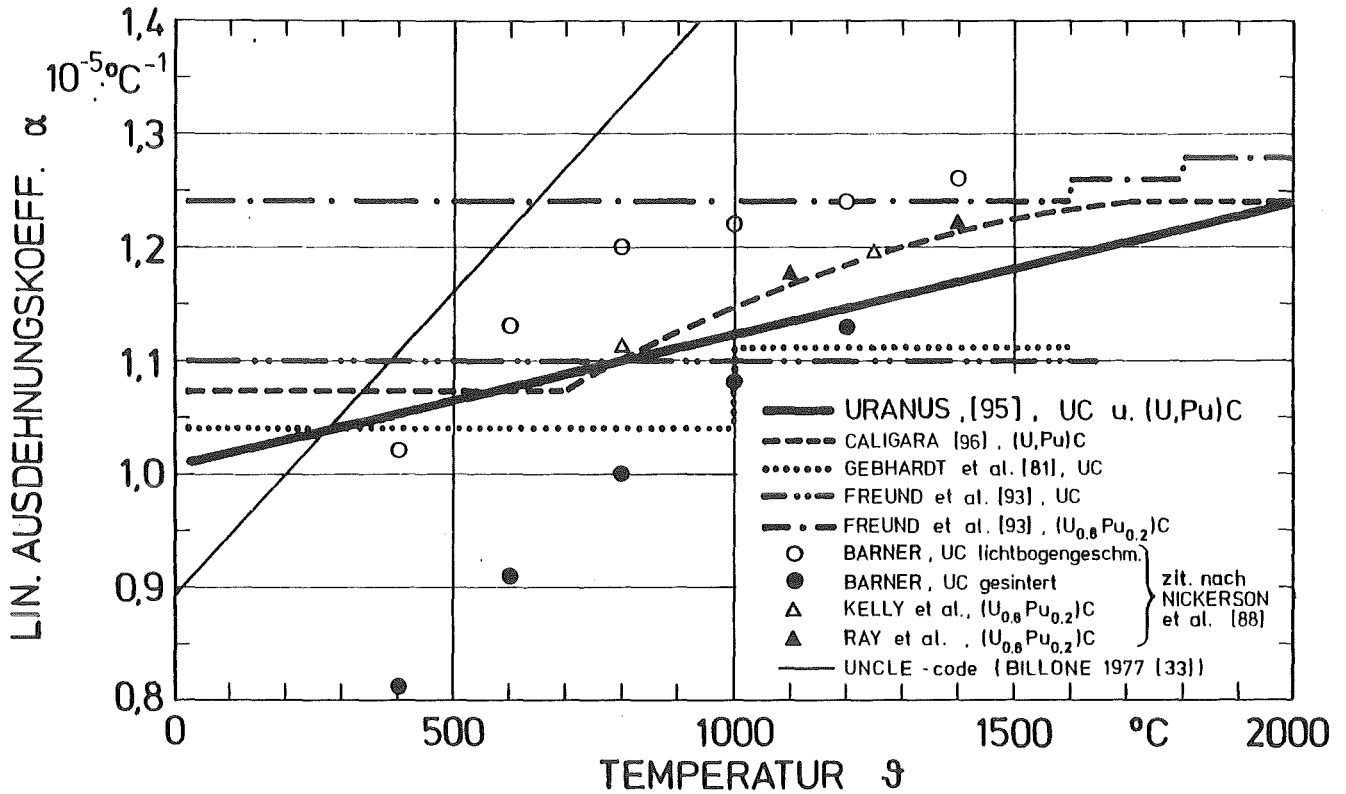


Abb. 13: Linearer Wärmeausdehnungskoeffizient  $\alpha$  von UC und (U,Pu)C als Funktion der Temperatur  $\vartheta$ ; Vergleich URANUS, mehrere Autoren

Für URANUS wurde die Gleichung von Steiner und Elbel /95/ übernommen (für UC und (U,Pu)C):

$$\alpha = 1.007 \cdot 10^{-5} + 1.17 \cdot 10^{-9} \cdot \vartheta \quad (53)$$

mit  $\alpha \left[ \frac{1}{^\circ\text{C}} \right]$  Wärmeausdehnungskoeffizient

$\vartheta [^\circ\text{C}]$  Temperatur

Zur Nachrechnung des Experimentes GOCAR 4 (vgl. Kapitel 4 und /97/) wird alternativ das Gesetz von Caligara /96/ übernommen (für (U,Pu)C):

$$\alpha = 0.823 \cdot 10^{-5} + 0.438 \cdot 10^{-8} \cdot \vartheta - 0.1134 \cdot 10^{-11} \cdot \vartheta^2 \quad (53')$$

mit  $\alpha \left[ \frac{1}{^\circ\text{C}} \right]$  Wärmeausdehnungskoeffizient

$\vartheta [^\circ\text{C}]$  Temperatur,  $700 \text{ }^\circ\text{C} < \vartheta < 1700 \text{ }^\circ\text{C}$

### 3.4.2.2 Wärmeleitfähigkeit $\lambda$

Die genaue Kenntnis der thermischen Leitfähigkeit des Brennstoffes ist - neben der Wärmedurchgangszahl  $h_{\text{gap}}$  im Spalt Hülle/Brennstoff - erste Voraussetzung für die Berechnung der Zentraltemperatur und des radialen Temperaturverlaufes. Die Güte dieser Temperaturberechnung ist im Rahmen der Brennstabstrukturanalyse eine entscheidende Grundlage für die Beschreibung der in der Regel stark temperaturabhängigen physikalischen Effekte (Spaltgasdiffusion und -freisetzung, Umstrukturierung, Kriechen, thermische Ausdehnung). Wie auch bei anderen wichtigen Materialeigenschaften sind experimentelle Daten zur Wärmeleitfähigkeit der Karbide rar, dabei weit streuend und teilweise widersprüchlich.

Der Wärmetransport wird in Karbiden (im interessierenden Temperaturbereich) durch Phononen und Elektronen besorgt, wobei bei tiefen Temperaturen der Gitteranteil und bei hohen der elektronische überwiegt. Beide Mechanismen werden durch Gitterstörungen beeinflusst, wobei das Einbringen von Fremdatomen und strukturellen Defekten im allgemeinen eine Herabsetzung der Leitfähigkeit des ungestörten Kristalls bewirkt /98/. Im Bereich tiefer Temperaturen ( $20^\circ - 300^\circ\text{C}$ ) ist wegen der Abnahme der Gitterleitfähigkeit mit steigender Temperatur ein Abfall von  $\lambda$  zu erwarten /98/.

Da mit zunehmender Temperatur die Beweglichkeit der Gitteratome wächst und die Schwingungen größer werden, ist bei hohen Tempe-

raturen ein positiver Temperaturkoeffizient und damit die Zunahme der Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  mit der Temperatur gegeben; Steiner /91/ sieht sie bereichsweise linear. Ebenso wirkt sich die Zunahme der relativen Dichte aus.

Die wichtigsten Einflußgrößen auf die Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  sind demnach:

- Temperatur
- Porosität
- Legierungszusammensetzung
- Stöchiometrie
- Abbrand
- Spaltgasgehalt der Matrix

Die meisten Verunreinigungen - vor allem gasförmige - verschlechtern die Wärmeleitfähigkeit. Dies gilt auch für die Zulegierung von Pu, die die Dichte von UC erniedrigt, so daß (U,Pu)C schlechtere Eigenschaften aufweist als UC /88, 91/.

Der Einfluß der Stöchiometrie und des Kohlenstoffgehaltes auf  $\lambda$  ist derzeit noch nicht abschließend geklärt; hier liegen teilweise widersprüchliche Ergebnisse vor /88/. Für die Porositätsabhängigkeit liegen dagegen Gesetze vor, teils linear von der Porosität abhängig (nach Leary zit. in /88/), teils nichtlinear:

$$\lambda(P) = \lambda \cdot \frac{(1-P)}{(1+P)} \quad \text{nach Steiner /91/} \quad (54)$$

$$\lambda(P) = \lambda \cdot (1-P)^{2/3} \quad \text{nach Steinbock /99/} \quad (54')$$

Abb. 14 zeigt einige der in der Literatur gefundenen Werte für UC, Abb. 15 diejenigen für (U,Pu)C. Für URANUS wurde für UC die Gleichung von Steiner /91/ übernommen:

$$\begin{aligned} \lambda \text{ [W/mm} \cdot \text{°C]} &= 0.02 \quad \text{für } \vartheta < 500 \text{ °C} \\ &= 0.02 + 1.3 \cdot 10^{-6} \cdot (\vartheta - 500) \quad \text{für } \vartheta > 500 \text{ °C} \end{aligned} \quad (55)$$

Für (U,Pu)C konnte wegen der Unterschiedlichkeit der gefundenen Daten keine allgemein gültige Formel gefunden werden, hier wur-

den alternativ die Gesetze von Steiner /91/ und Caligara /94/ übernommen:

$$\lambda \text{ [W/mm}\cdot\text{°C]} = 0.0126 \quad \text{für } \vartheta < 500 \text{ °C}$$

$$= 0.0126 + 4.1 \cdot 10^{-6} \cdot (\vartheta - 500) \quad \text{für } \vartheta > 500 \text{ °C} \quad \left. \begin{array}{l} \\ \\ \end{array} \right\} /91/ \text{ (56)}$$

$$\lambda(P) = \lambda \cdot \frac{(1 - P)}{(1 + P)}$$

$$\lambda \text{ [W/mm}\cdot\text{°C]} = 0.012265 \quad \text{für } \vartheta < 700 \text{ °C}$$

$$= -0.0178 + 0.594 \cdot 10^{-4} \cdot \vartheta - 0.235 \cdot 10^{-7} \cdot \vartheta^2 \quad \left. \begin{array}{l} \\ \\ \end{array} \right\} /94/ \text{ (56')}$$

$$\text{für } 700 \text{ °C} < \vartheta < 1200 \text{ °C}$$

$$= 0.0196 \quad \text{für } \vartheta > 1200 \text{ °C}$$

$$\lambda(P) = \lambda \cdot (1 - P)^{2/3}$$

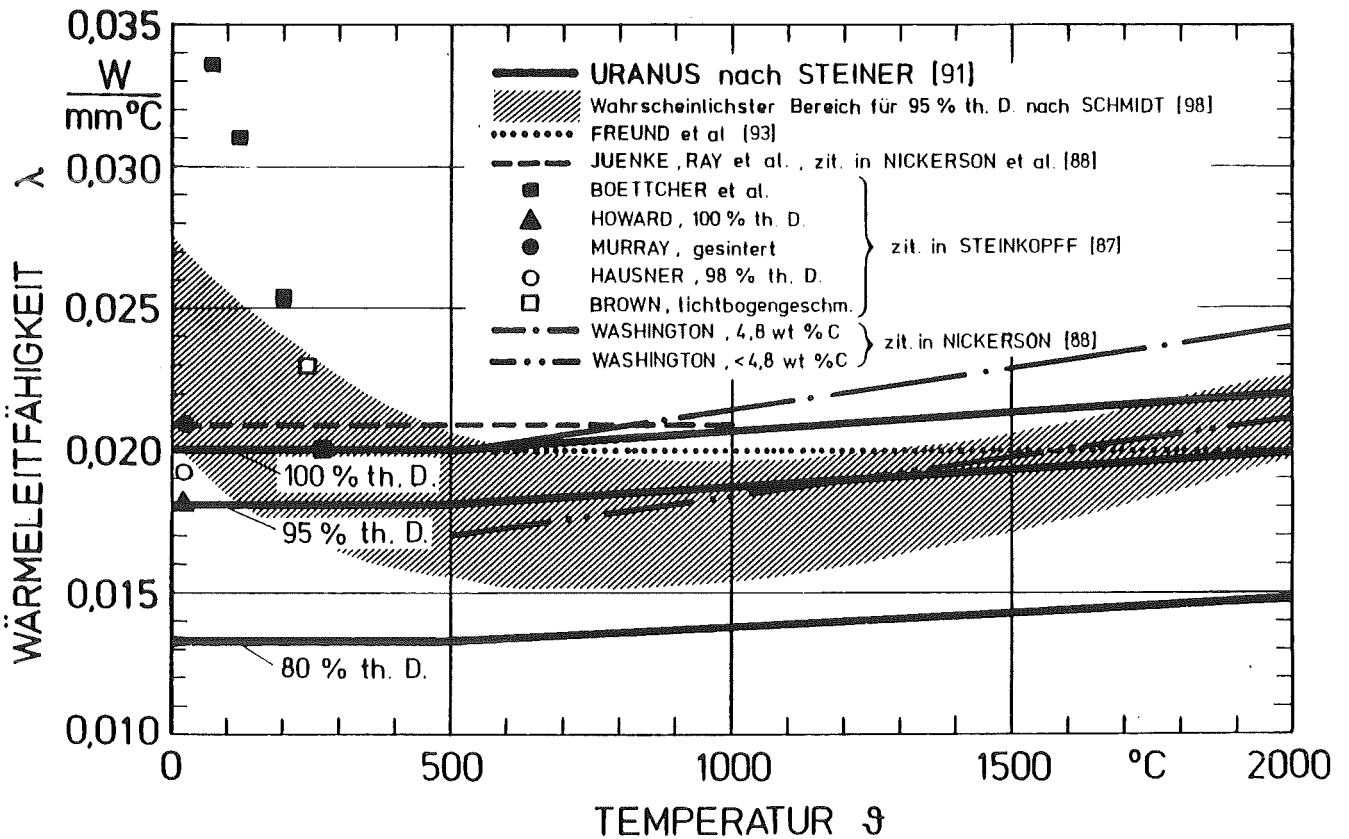


Abb. 14: Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  für UC nach mehreren Autoren

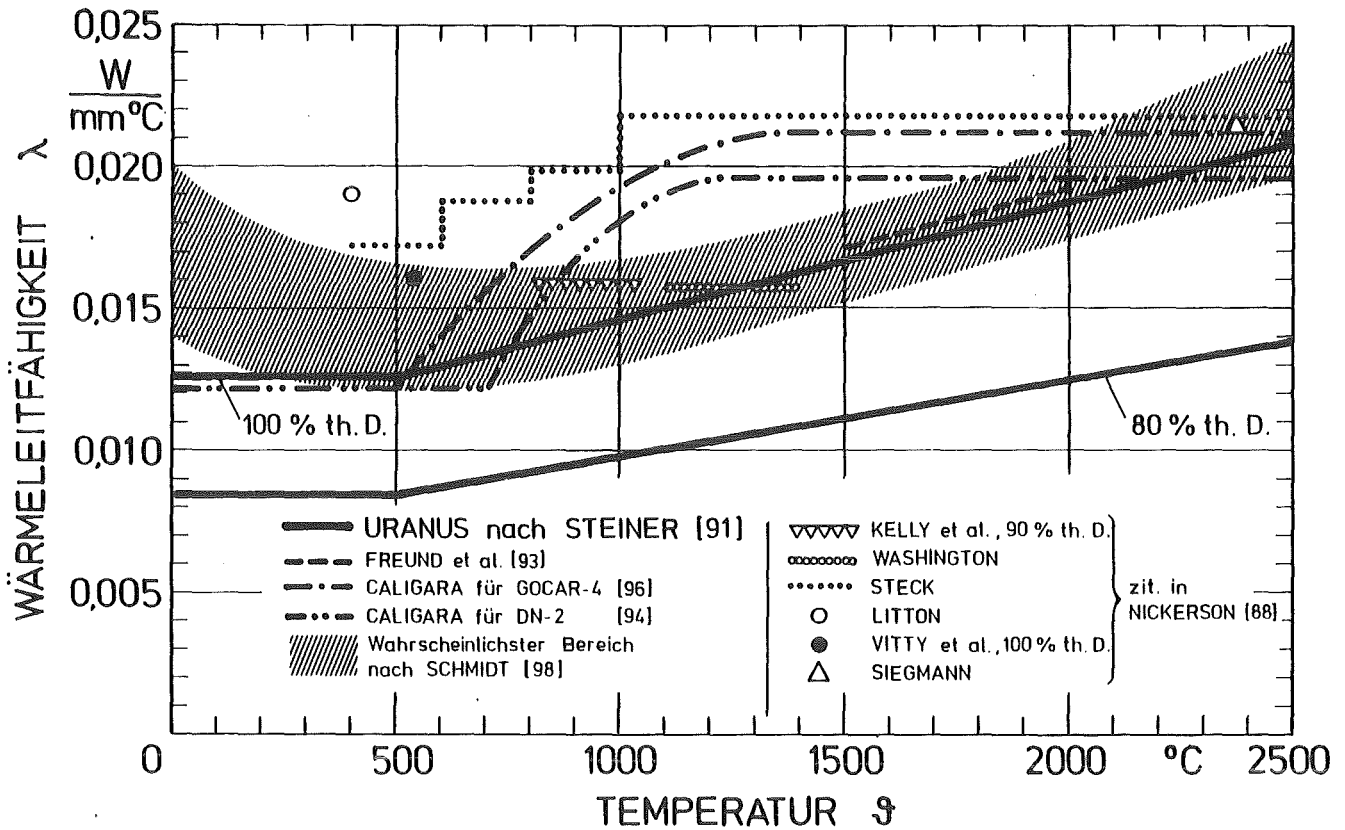


Abb. 15: Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  für (U,Pu)C nach mehreren Autoren

Zur Nachrechnung des Experimentes GOCAR-4 /97/ steht außerdem das Gesetz von Caligara /96/ zur Verfügung:

$$\lambda \text{ [W/mm}^\circ\text{C]} = 0.84 \cdot 10^{-3} + 0.3 \cdot 10^{-4} \cdot \vartheta - 0.106 \cdot 10^{-7} \cdot \vartheta^2 \quad (56'')$$

für  $500^\circ\text{C} < \vartheta < 1400^\circ\text{C}$

Die beschriebenen Gesetze sind nur temperaturabhängig, ihre Anwendung auf bestrahlten Brennstoff höheren Abbrandes (Gitterdefekte, Spaltgasblasen) muß nicht zu zufriedenstellenden Ergebnissen führen.

### 3.4.2.3 Spezifische Wärme $c_p$

Im Gegensatz zu rein stationären Untersuchungen, bei denen die Kenntnis der Wärmeleitfähigkeit  $\lambda$  zur Bestimmung des Temperaturfeldes ausreicht, wird zur Lösung der Wärmeleitungsgleichung unter instationären Bedingungen die spezifische Wärme  $c_p$  benötigt, die deutlichen Einfluß auf die Kinetik von schnellen Aufheiz- und Abkühlphasen hat. Die spezifische Wärme  $c_p$  von UC und (U,Pu)C wird in mehreren Literaturstellen und zudem weitgehend übereinstimmend als Funktion der Temperatur angegeben. Die Kurven steigen vom absoluten Nullpunkt aus zunächst steil an, haben im Bereich von etwa 0 °C bis zur Schmelztemperatur jedoch nur noch geringe Steigungen.

Nickerson und Kastenbergl /88/ zitieren für UC im Bereich von 400 °C bis 1000 °C Werte von 13.7 bis 16.1 cal/mol·K, Gebhardt et al. /81/ geben für 125 °C 0.048 cal/g·K bzw. für 265 °C 0.055 cal/g·K an, was sich gut mit den von Hoffmann /92/ angegebenen Kurven deckt, die im Bereich von 0 °C bis zum Schmelzpunkt etwa den Bereich 12 bis 16 cal/mol·K durchlaufen. Für URANUS wurde für den interessierenden Temperaturbereich eine Geradengleichung aufgestellt:

$$c_p \text{ (UC)} = 6.05 \cdot 10^{-5} + 1.07 \cdot 10^{-8} \cdot T \quad (57)$$

$c_p$  in Wh/gK , T in K

Für Mischkarbid geben Nickerson und Kastenbergl /88/ Werte zwischen 13.8 und 15.7 cal/mol·K an (800 bis 1400 °C) sowie 14.5 cal/mol·K für 538 °C. Werte für PuC liegen nach Gebhardt et al. /81/ im Bereich -173 bis 1027 °C zwischen 2 und 14 cal/mol·K (im interessierenden Temperaturbereich zwischen 10 und 14 cal/mol·K), nach Hoffmann /92/ zwischen 11 und 15 cal/mol·K (130 bis 1400 °C). Die Werte liegen also etwas niedriger als für UC. Für URANUS wurde deshalb festgelegt:

$$c_p \text{ (U,Pu)C} = 5.58 \cdot 10^{-5} + 1.07 \cdot 10^{-8} \cdot T \quad (57')$$

$c_p$  in Wh/gK , T in K

Die Werte für  $c_p$  liegen etwa um 1/3 niedriger als für UO<sub>2</sub>.

#### 3.4.2.4 Schmelzpunkt $\vartheta_s$ und Schmelzenthalpie $f_h$

Für transiente Störfalluntersuchungen ist der Umwandlungspunkt von der festen zur flüssigen Phase von besonderem Interesse.

Für den Schmelzpunkt  $\vartheta_s$  von UC geben Nickerson et al. /88/ 2365 °C  $\pm$  165 an, wobei die obere Grenze realistischer scheint. Für (U,Pu)C werden Werte von 2370 °C  $\pm$  20 und 2470 °C /88/ angeführt (für PuC 1650 °C /88/).

Für URANUS wurden folgende Werte übernommen:

$$\begin{aligned}\vartheta_s (\text{UC}) &= 2500 \text{ }^\circ\text{C} \\ \vartheta_s (\text{U,Pu)C} &= 2370 \text{ }^\circ\text{C}\end{aligned}\tag{58}$$

Für die zum Schmelzen notwendige Energiezufuhr (Schmelzwärme  $f_h$ ) werden die Angaben von Hoffmann /92/ verwendet:

UC und (U,Pu)C:

$$f_h = 5.16 \cdot 10^{-2} \text{ Wh/g}\tag{59}$$

Dieser Wert liegt etwa um 1/3 niedriger als für UO<sub>2</sub>.

#### 3.4.2.5 Wärmedurchgang im Spalt $h_{\text{gap}}$

Ein ganz wesentlicher Faktor in der Ermittlung der Brennstofftemperaturen ist die zufriedenstellende Behandlung des Wärmeübergangs im Spalt zwischen Brennstoff und Hülle. Dies gilt im besonderen für die Analyse von karbidischen Brennstoffen, weil Unsicherheiten in der Wärmedurchgangszahl wegen des flachen Temperaturprofiles im Brennstoff relativ größeren Einfluß auf das Temperaturniveau haben als bei den Oxiden, wie das Beispiel zeigt:

- Beispiel: Stab mit  $q' = 50 \text{ W/mm}$ , Hüllentemperatur

$\vartheta_h = 650 \text{ K}$ , Wärmedurchgangszahl  $h_{\text{gap}} = 0.032 \text{ W/(mm}^2\text{K)}$ ,

Temperaturdifferenz  $\Delta\vartheta_{\text{gap}} = 100 \text{ K}$ .

$\Delta\vartheta_{\text{Brennst.}} = q' / (4 \cdot \pi \cdot \lambda)$

	$\lambda$	$\Delta\vartheta_{\text{Brennst.}}$	$\vartheta_{\text{Zentral}}$	Anteil $\Delta\vartheta_{\text{gap}}$ in %
UC	0.02	200 K	950 K	33.3
UO <sub>2</sub>	0.0036	1100 K	1850 K	8.3

Tabelle 5: Einfluß der Wärmedurchgangszahl auf die Zentraltemperatur

Demzufolge ist auch der Einfluß der Wärmedurchgangszahl auf temperaturempfindliche Prozesse (z. B. Spaltgasfreisetzung) gravierender als bei den Oxiden. Entsprechend macht sich hier auch der Einfluß möglicher exzentrischer Pelletlagen gravierender bemerkbar als beim Oxidstab; er darf eigentlich nicht vernachlässigt werden. Wegen der geringen radialen Temperaturdifferenzen fallen zudem große Bereiche des Brennstoffes in Zonen gleicher Struktur, weshalb geringfügige Änderungen des Temperaturniveaus deutliche Auswirkungen auf Umstrukturierung und Spaltgasfreisetzung haben können.

Theoretische und experimentelle Untersuchungen zum Wärmedurchgang bei Karbiden wurden beispielsweise von Steiner /100/ durchgeführt.

Für die URANUS-Karbidvariante wird das sehr detaillierte Wärmedurchgangsmodell von Laßmann /6/ eingesetzt, das an einer erheblichen Anzahl experimenteller Ergebnisse geeicht ist und für die unterschiedlichsten Werkstoffpaarungen Hülle/Brennstoff und für beliebige Gaszusammensetzungen im Spalt sehr zufriedenstellende Ergebnisse liefert. Als wesentliche Eingangsgrößen für den Wärmedurchgang im Spalt- und Kontaktfall werden die Spaltweite bzw. der Kontaktdruck, die Oberflächenrauigkeiten von Brennstoff und Hülle (arithmetischer Mittenrauhwert) sowie Gasdruck und -zusammensetzung benötigt. Die beiden letztgenannten Größen sind auch im Kontaktfall von entscheidender Bedeutung, da das Modell den Einfluß von Gasblasen in den Tälern der technischen Oberfläche berücksichtigt. Rechnungen an einer Vielzahl von Oxid- und Karbidstäben (durchgeführt mit URANUS und anderen Codes) bestätigen den Wert des Modelles; allerdings sind sinnvolle Resul-



tate nur dann zu erwarten, wenn die Randbedingungen einigermaßen korrekt formuliert werden können, was gerade beim Karbidstab nicht leicht ist. Messungen der Oberflächenrauigkeiten von Brennstoff und Hülle liegen im allgemeinen nur für unbestrahlte Werkstoffe vor, und über die bestrahlungs- und betriebsbedingten Änderungen dieser Größen (Abplattungen der "Gebirgsspitzen" durch Fließen und Kriechen, "Verzahnen" von Hülle und Brennstoff) liegt praktisch kein Material vor. Gerade bei Verwendung weicher Hüllmaterialien (z. B. Niob im GOCAR-4-Experiment /96, 97) haben solche Effekte erheblichen Einfluß. Aber auch in Experimenten mit Stahlhüllrohren treten vergleichbare Effekte auf. Steiner et al. /101/ vermuten für die Experimente Vg 6a und 6c ebenfalls eine Abnahme der Oberflächenrauigkeiten mit der Bestrahlung. Chow und Billone /102/ brachten deshalb für den UNCLE-Code einen "Unsicherheitsterm" in das GAPCON-Wärmedurchgangsmodell ein und erzielten gute Ergebnisse. Daneben kann der Wärmedurchgang durch chemische Reaktionen zwischen Hülle und Brennstoff beeinflusst werden (z. B. Aufkohlung der Hülle).

Nichtzuletzt ist die noch nicht vollständig geklärte Kinetik der Spaltgasfreisetzung Ursache für erhebliche Unsicherheiten bei der Bestimmung der Wärmedurchgangszahl. Vergleichende Rechnungen zeigen bei nur geringfügigen Variationen der eingehenden Größen bereits deutliche Unterschiede in der Wärmedurchgangszahl (Abb. 16).

Für Untersuchungen zu Stäben mit Natriumbindung werden typische Werte von  $h_{\text{gap}} = 0.1$  bis  $0.165 \text{ W/mm}^2 \text{ K}$  für frische Stäbe und  $0.0002$  bis  $0.001 \text{ W/mm}^2 \text{ K}$  für den Verlust der Na-Bindung (Loss of Bond, LOB) angesetzt (nach /88, 103/), in guter Übereinstimmung mit den Daten nach MAPLIB /31/ für flüssiges bzw. dampfförmiges Natrium.

#### 3.4.3 Bestrahlungsverhalten

Wie auch bei den Uranoxid-Brennstoffen treten bei den Karbiden durch Neutronenbestrahlung und den dadurch ausgelösten Kernspaltungen, verbunden mit hohen Werkstofftemperaturen, typische Effekte auf: Schwellen des Brennstoffes durch Einlagern von festen und gasförmigen Spaltprodukten, Bestrahlungskriechen, Diffusion und Freisetzung von Spaltgasen, Nachsintern, Umstrukturierung,

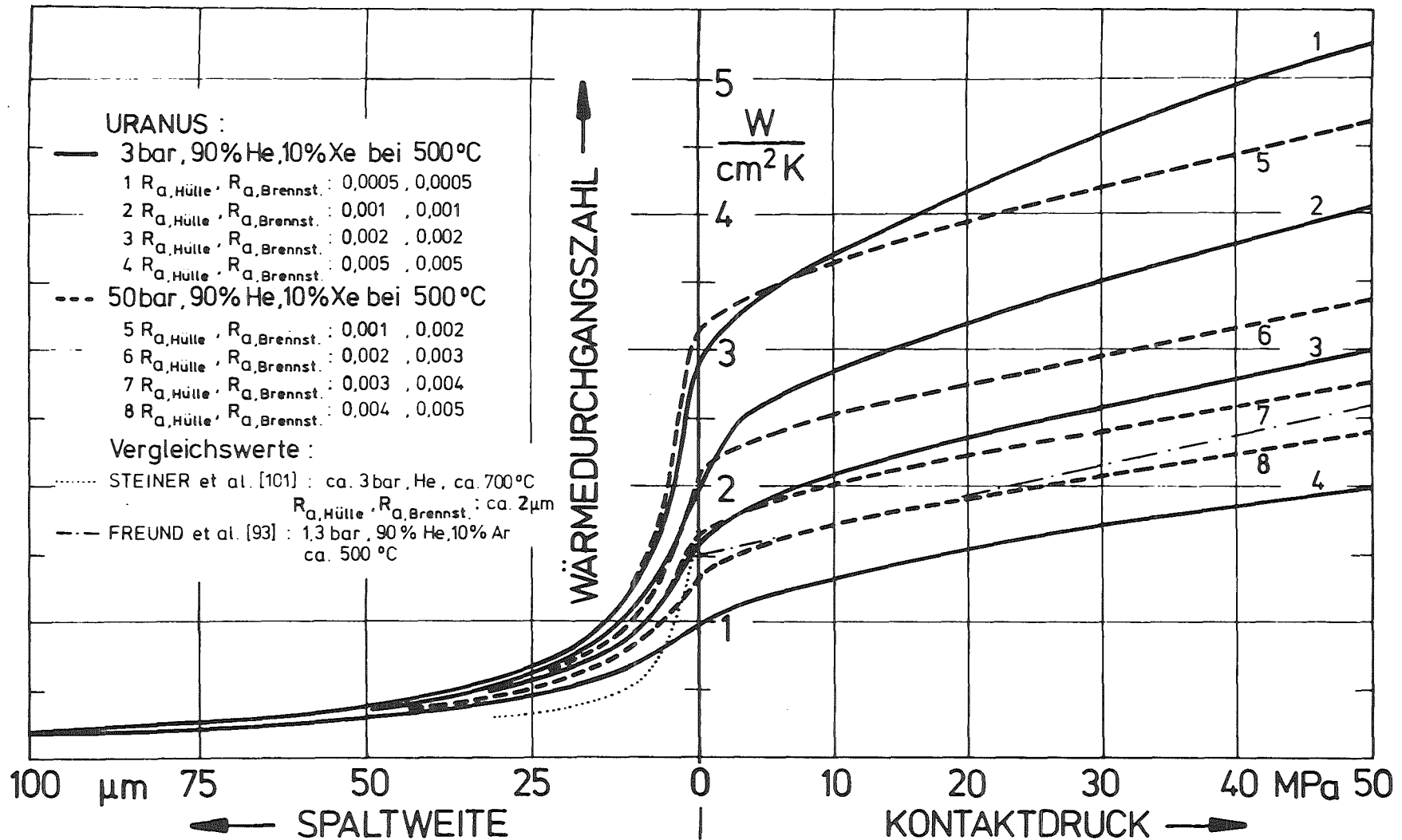


Abb. 16: Wärmedurchgangszahl im Spalt; Mischkarbid mit Niob-1%Zr-H\u00fclle, Parameteruntersuchung

Änderung der Uran-Plutonium-Verteilung bei Mischkarbiden, um nur die wichtigsten zu nennen. Wegen des extrem hohen experimentellen und meßtechnischen Aufwandes sind unter in-pile-Bedingungen gewonnene Daten und in Heißen Zellen nachuntersuchte Brennstäbe naturgemäß seltener als out-of-pile-Ergebnisse. Die durchgeführten Experimente sind zudem in der Regel nicht direkt vergleichbar, weil die eingesetzten Brennstoffe (Herstellungsverfahren, Legierungszusammensetzung, Stöchiometrie, Korngröße, Porosität), die Betriebsbedingungen (Fluß, Leistung, Temperatur) und die Hüllrohrwerkstoffe in der Regel verschieden sind. Es zeigt sich gerade bei den Bestrahlungsexperimenten sehr deutlich, daß es "den" Karbidbrennstoff nicht gibt, und daß die oben genannten Einflüsse zu erheblichen Unterschieden im Verhalten des Brennstoffes führen können. Für einige der auftretenden Phänomene muß zudem festgestellt werden, daß die grundlegenden physikalischen Zusammenhänge noch nicht endgültig geklärt sind.

Im folgenden sollen die für eine modellmäßige Behandlung wichtigsten Effekte beschrieben werden.

#### 3.4.3.1 Schwellen $\frac{\Delta V}{V}$

Unter Bestrahlung hat Reaktor-brennstoff die Eigenschaft, sein Volumen durch Porenbildung und Einlagern von Spaltprodukten zu vergrößern. Mit zunehmendem Abbrand schwillt so der Spalt zwischen Brennstoff und Hülle allmählich zu, und nach Eintreten des radialen Kontaktes wird das Hüllrohr durch weiteres Schwellen gedehnt. Diese Dehnungen können unter Umständen gedämpft werden, wenn entsprechendes Leervolumen im Brennstoff vorhanden ist. Die Schwellraten der Karbide sind allerdings deutlich höher als bei den Oxiden; Nickerson und Kastenbergl88/ führen dies auf die geringere Spaltgasfreisetzung und die nicht mit den Oxiden vergleichbare Umstrukturierung zurück, beides in Konsequenz des flacheren Temperaturprofiles. Während der Anteil eingelagerter fester Spaltprodukte direkt von der Zahl der gespaltenen Atome, also dem Abbrand abhängt, ist der Anteil des im Brennstoff verbleibenden Spaltgases stark von der örtlichen Struktur (Porosität, Korngröße) und natürlich der Temperatur abhängig. Es liegt

deshalb nahe, bei der Betrachtung der Schwellphänomene im Karbidbrennstoff in Festkörper- und Gasanteil zu unterscheiden. Die Mehrzahl der in Nachbestrahlungsuntersuchungen vorgenommenen Messungen geben jedoch nur den gesamten Betrag des Schwellens an, der nach mehreren Autoren (zitiert in /88/) im Bereich 1,6 % - 3 % Volumenänderung je Prozent Abbrand liegt. Freie Schwellraten (keine Behinderung durch Hülle oder kältere äußere Ringzonen des Brennstoffes) liegen teilweise erheblich höher (bis 10,1 % /104/). Wesentliche Einflußfaktoren auf das Schwellverhalten sind

- Temperatur
- Abbrand
- Stöchiometrie
- Legierungszusammensetzung
- Porosität
- Korngröße
- Neutronenfluß

Wegen der Vielzahl von einflußnehmenden Effekten ist ein Vergleich experimentell gewonnener Daten oft sehr schwierig. Das Schwellverhalten hochdichter Karbide unterscheidet sich beispielsweise von dem mittel- und niederdichter (77 - 90 % th. D.), weil letzterer in die Hohlräume schwellen kann; mit zunehmender Temperatur und mit zunehmendem Abbrand nimmt dagegen die Schwellrate zu. Unterstöchiometrischer Brennstoff schwillt stärker als stöchiometrischer, weil das freie Metall U und Pu niedrig schmelzende Eutektika bildet, was den Schwellwiderstand herabsetzt /88/. Verunreinigungen behindern die Gasdiffusion und damit die Blasenbildung und die Beweglichkeit der Blasen, was zu niedrigeren Schwellraten führt; gleiches gilt für die Zunahme des Gehaltes von freiem Kohlenstoff /105/.

Die Temperaturabhängigkeit der Schwellrate folgt aus dem Verhalten der im Brennstoff befindlichen Gasanteile. Die Bewegung von Gitterleerstellen, in denen einzelne Gasatome gefangen sind, gibt diesen die Möglichkeit der Volumendiffusion. Ab einer bestimmten Löslichkeitsgrenze für Gasatome (bei 1000 °C etwa  $10^{-9}$  -  $10^{-8}$  Atome je Atom Uran /105/) bilden sich Blasenkeime; die

Ausbildung von Blasen führt dann zur Gitterverspannung und damit zur Volumenzunahme. Durch Bestrahlung wird das Lösungsvermögen stark erhöht, wodurch sich die Ausbildung der Blasen verspätet; Steiner /91/ registriert das Auftreten erster optisch sichtbarer Blasen (Radius  $\geq 0,2 \mu\text{m}$ ), die als Indiz für Porenschwellen angesehen werden, bei Temperaturen um  $800^\circ\text{C}$  erst bei 8,8 % Abbrand. Die Temperatur für das Einsetzen des Gasschwellens (breakaway swelling) wird mit  $900 - 1050^\circ\text{C}$  angegeben /91, 95, 106/; wegen der mit dem Abbrand zunehmenden Zahl an Gasatomen in der Matrix sinkt diese Temperaturgrenze mit steigendem Abbrand /88/. Da durch die Blasenbildung zusätzlicher Leerraum geschaffen wird, ändert sich die örtliche Porosität im Brennstoff. Im Falle des radialen Kontaktes mit der Hülle ist somit Kriechen in die Poren möglich, so daß der Gasanteil des Schwellens abnimmt /91/. Die Problematik des Gasblasenschwellens ist natürlich eng verwandt mit der Spaltgasfreisetzung und der Umstrukturierung und muß konsistent behandelt werden.

Die ausgeführten Punkte deuten bereits an, daß eine physikalisch begründete modellmäßige Behandlung des Schwellens (und der Spaltgasfreisetzung) für Karbidbrennstoff nicht einfach ist. Blank et al. /61/ sehen einen möglichen Weg durch Aufteilen des Schwellens in vier Anteile, die die Beiträge fester Spaltprodukte, kleiner Gasblasen, Poren und Risse beschreiben, sowie durch Unterteilung des Brennstoffes in vier Strukturzonen mit definierten physikalischen Eigenschaften. Ein solches Modell benötigt zwangsläufig detaillierte Daten über das Bestrahlungsverhalten des zu untersuchenden Brennstoffes, die für Auslegungsrechnungen jedoch häufig gar nicht verfügbar sind.

Für URANUS wurde deshalb zunächst ein allein auf experimentellen Ergebnissen beruhendes, einfaches quasi-stationäres Modell entwickelt, das leicht zu handhaben ist und problemlos an neuere Daten angepaßt werden kann. Es wird im folgenden beschrieben. Für eine weitere Entwicklung der Karbid-Variante muß dagegen der Einsatz detaillierterer physikalischer Modelle durchaus erwogen werden.

Das URANUS-Modell berücksichtigt die zwei Effekte Gasblasen-

schwollen und Festkörperschwellen, die additiv behandelt werden. Folgende Daten werden zugrundegelegt: Auswertung der KfK-Experimente Vg6a und c /101/, Mol11-K1 und K2 /93, 25/, Mol15 /107/ sowie die Literaturstellen /88, 91, 106, 108-111/. Das Festkörperschwellen ist temperaturunabhängig /91, 106/, es ist nicht kompensierbar und dem Abbrand proportional /95/. Die Volumenzunahme pro Prozent Abbrand beträgt nach verschiedenen neueren Messungen zwischen 0,426 % /93/ und 0,6 - 0,9 % /107/ für Schwellen mit Hüllrohrkontakt, nach älteren Meßwerten 1,3 % - 1,6 % /91, 95, 100, 110/. Für das Modell wird für den Fall des eingetretenen, harten Kontaktes Hülle-Brennstoff bei niederdichtem Brennstoff der Wert von Freund et al. /93/ als Minimum übernommen (für UC und (U,Pu)C):

$$\frac{\Delta V}{V} = 0.4667 \text{ Vol \%} / 10 \frac{\text{MWd}}{\text{kg}} \quad (60)$$

Dieser Wert beinhaltet auftretende "hot-pressing"-Effekte im Kontaktfall, so daß eine zusätzliche Behandlung des hot-pressing an anderer Stelle nicht mehr erfolgen darf.

Als Maximum werden für das Schwellen in hochdichtem Brennstoff ohne Hüllrohrkontakt bei Temperaturen unterhalb des Einsatzpunktes starken Gasblasenschwellens folgende Werte verwendet:

$$(U,Pu)C : \frac{\Delta V}{V} = 1.3838 \text{ Vol \%} / 10 \frac{\text{MWd}}{\text{kg}} \quad \text{für } \vartheta < 900^\circ\text{C} \quad (61)$$

$$UC : \frac{\Delta V}{V} = 2.178 \text{ Vol \%} / 10 \frac{\text{MWd}}{\text{kg}} \quad \text{für } \vartheta < 700^\circ\text{C} \quad (61')$$

Neben dem unbehinderten Schwellen infolge Einlagern der festen Spaltprodukte berücksichtigen diese Werte bereits einen temperaturunabhängigen Grundanteil des Gasschwellens, der auch zur Veränderung der örtlichen Porosität beiträgt.

Oberhalb 900 °C für Mischkarbid bzw. 700 °C für Urankarbid wird das Einsetzen des Gasblasenschwellens angenommen, das durch eine parabolisch zunehmende Funktion beschrieben wird, die allerdings oberhalb 4,56 % Volumenschwellen für UC bzw. 3,4 % Volumenschwellen für (U,Pu)C in Analogie zu den bekannten Meßwerten bei hohen Temperaturen begrenzt wird. Das Gasblasenschwellen wird ebenfalls

proportional dem Abbrand betrachtet. Zur Berücksichtigung des Porositätseinflusses, der Behinderung des Schwellens infolge Hüllrohrkontakt und der Abbrandabhängigkeit des breakaway-swellling werden die so erhaltenen Funktionen durch anzupassende Modellparameter korrigiert. Es ergeben sich folgende Gleichungen für Festkörper- plus Gasswellen:

(U, Pu)C

bis 900 °C :  $\frac{\Delta V}{V} = 0.4667 + 0.9171 \cdot f(P, pc)$

oberhalb 900 °C :  $\frac{\Delta V}{V} = 0.4667 + 0.9171 \cdot f(P, pc) + ((11.8062 - 0.0257 \cdot \vartheta + 0.1398 \cdot 10^{-4} \cdot \vartheta^2) \cdot f(BU) \cdot f(P, pc))$  (62)

oberer Grenzwert:  $\frac{\Delta V}{V} = 3.406$

Korrektur :  $f(BU) = \left( \frac{BU}{BU_0} - a \right)$  ,  $f(BU) \geq 0$

Korrektur :  $f(P, pc) = \exp(-(P - 0.04)) \cdot \exp\left(-\frac{pc}{pc_0} \cdot b\right)$  ,  
 $(P - 0.04) \geq 0$

UC

bis 700 °C :  $\frac{\Delta V}{V} = 0.4667 + 1.711 \cdot f(P, pc)$

oberhalb 700 °C :  $\frac{\Delta V}{V} = 0.4667 + 1.711 \cdot f(P, pc) + ((6.412 - 0.0198 \cdot \vartheta + 0.152 \cdot 10^{-4} \cdot \vartheta^2) \cdot f(BU) \cdot f(P, pc))$  (62')

oberer Grenzwert:  $\frac{\Delta V}{V} = 4.558$

mit	$\frac{\Delta V}{V}$	$\% / \frac{10MWd}{Kg}$	Volumenschwellen
	$\vartheta$	°C	Temperatur
	BU	$\frac{MWd}{Kg}$	Abbrand
	P	[ / ]	Porosität
	pc	MPa	Kontaktdruck
	a, b	[ / ]	Modellparameter
	$BU_0$	$= \frac{10MWd}{Kg}$	Normierung

$$p_{cO} = 1 \text{ MPa}$$

Normierung

Durch Variation des Modellparameters  $a$  etwa im Bereich 0 bis 5 kann das Einsetzen des Gasblasenschwellens zwischen 0 und 5 % Abbrand variiert werden; die Einstellung sollte allerdings in Analogie zu der abbrandabhängigen Verzögerung der Spaltgasfreisetzung stehen. Durch Wahl des Parameters  $b$  zwischen 0 und 1 kann der Einfluß des Kontaktdruckes auf das Schwellen unterdrückt oder betont werden. Bisher wurden gute Resultate mit  $a \approx 2$  und  $b \approx 0.1$  erzielt. Abb. 17 zeigt Ergebnisse des Modells für (U,Pu)C gegen experimentelle Daten, Abb. 18 desgleichen für UC.

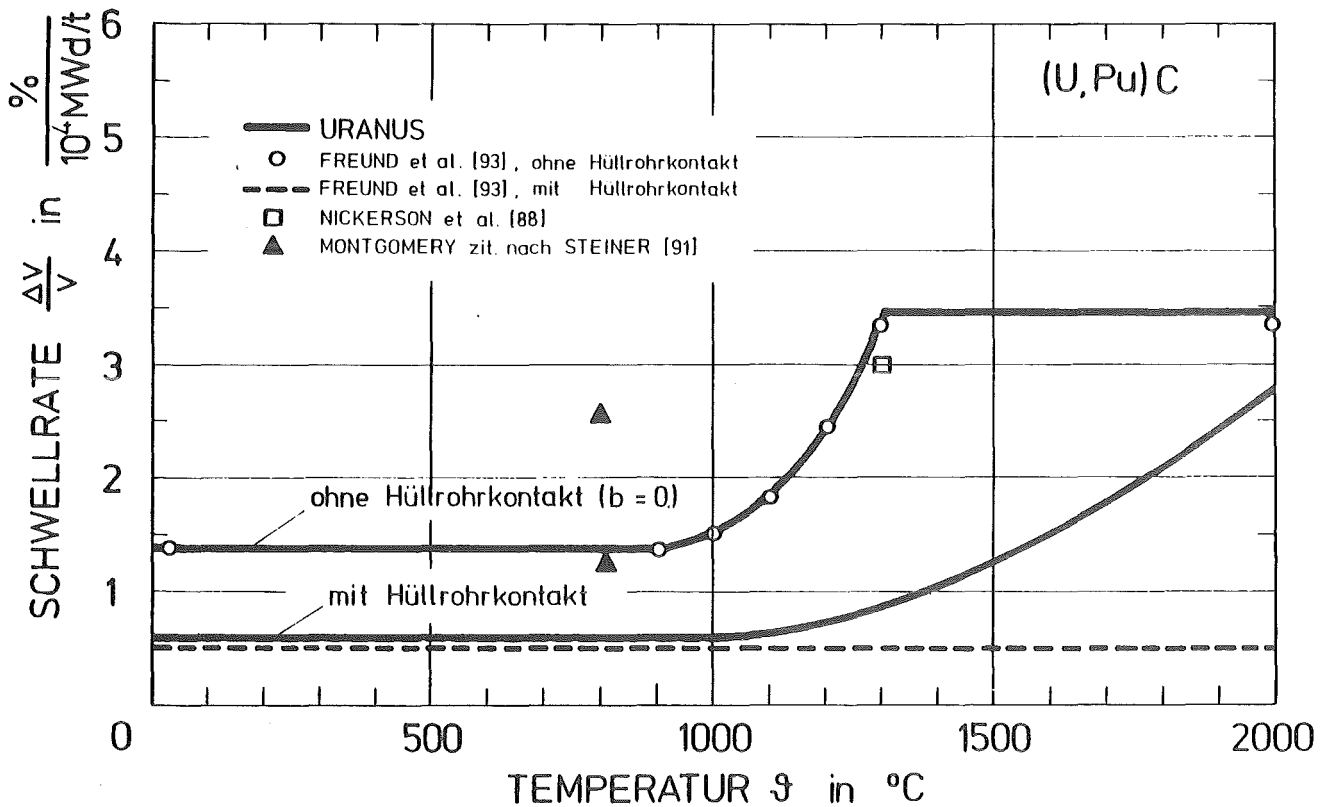


Abb. 17: Temperaturabhängigkeit des Schwellens von (U,Pu)C; Vergleich experimenteller Daten mit dem URANUS-Modell. Modellparameter:  $b = 0.1$ , Kontaktdruck  $p_c = 20 \text{ MPa}$ , Porosität 4 %



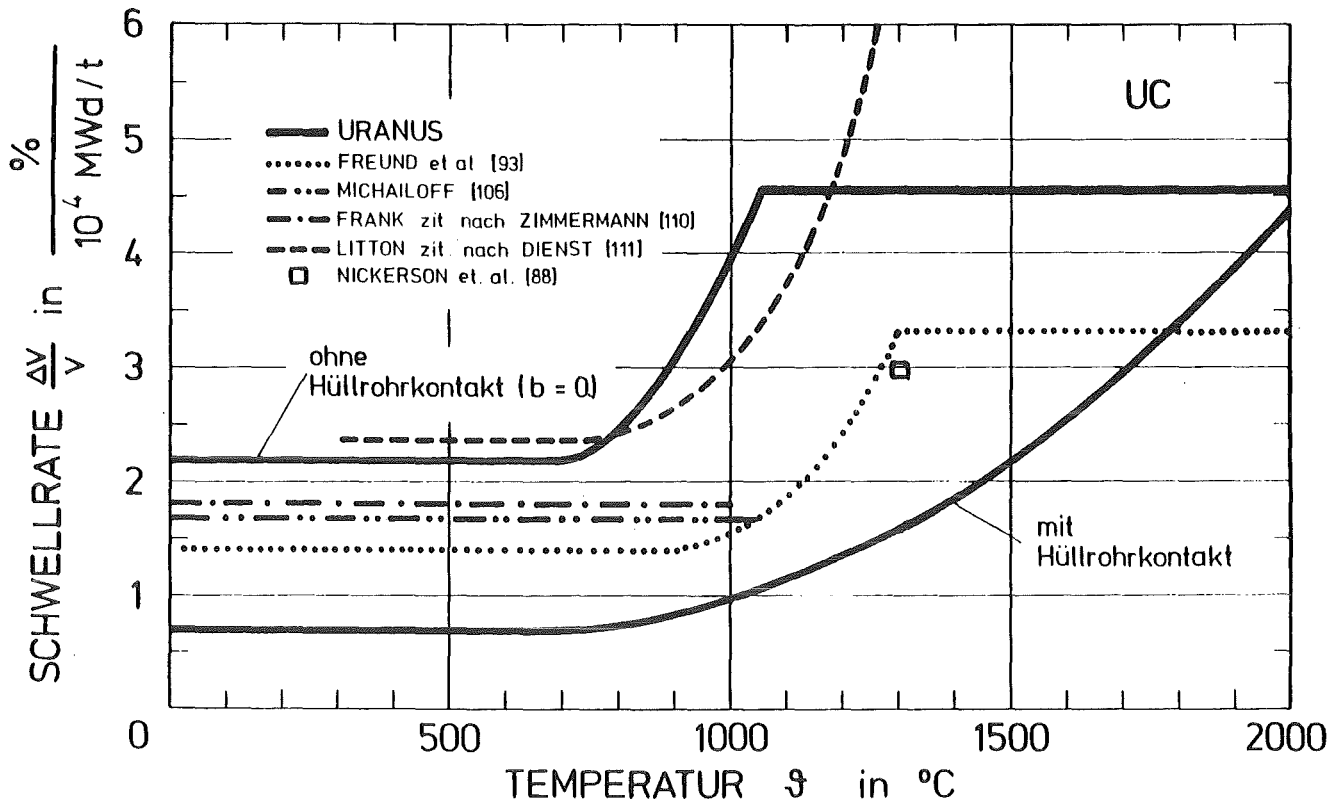


Abb. 18: Temperaturabhängigkeit des Schwellens von UC; Vergleich experimenteller Daten mit dem URANUS-Modell.  
 Modellparameter:  $b = 0.1$ , Kontaktdruck  $p_c = 20$  MPa,  
 Porosität 4 %

### 3.4.3.2 Kriechverhalten

Die infolge des Temperaturgradienten im Brennstoff hervorgerufenen thermischen Spannungen sowie die aus Umstrukturierung, Schwellen und Kontakt Hülle/Brennstoff herrührenden mechanischen Spannungen erreichen erhebliche Größenordnungen; sie können durch elastische und plastische Verformungen von Brennstoff und Hüllrohr, aber auch durch Reißen der Brennstofftabletten und durch Kriechvorgänge abgebaut werden. Kriechen ist im Gegensatz zu den bei Überschreiten der Fließgrenze unmittelbar auftretenden plastischen Dehnungen eine zeitabhängige Verformung, die bereits bei Spannungen weit unter der Fließgrenze auftreten kann, wenn eine werkstoffabhängige Aktivierungsenergie (Temperatur, Bestrahlung) zugeführt wird. Im Rahmen der Brennstabstrukturanalyse ist es ausreichend, die Betrachtung auf das primäre und sekundäre

Kriechen zu beschränken, da Bereiche tertiären Kriechens außerhalb der üblichen Standzeiten liegen. Die Behandlung des Kriechens ist jedoch problematisch, weil die auftretenden Vorgänge extrem nichtlinear von Temperatur und Spannung abhängen. Für die Karbidvariante wird deshalb zunächst nur die Behandlung sekundären Kriechens vorgesehen, das bei längeren quasi-stationären Belastungen eindeutig dominiert. Daten zum primären Kriechen können später z.B. aus /82/ übernommen werden.

Thermisches Kriechen für UC und (U,Pu)C tritt etwa bei 1000 °C ein und überwiegt dann deutlich über das bestrahlungsinduzierte Kriechen /91, 112/; wegen der hohen möglichen Spaltraten in Karbidbrennstoff und des flachen Temperaturprofiles liefert das bestrahlungsinduzierte Kriechen dennoch wichtige Beiträge zum Spannungsabbau.

Für UC und (U,Pu)C wurde wenig unterschiedliches Verhalten gefunden /91/, so daß im folgenden nicht differenziert wird. Bei der geringen Anzahl an in-pile-Experimenten, den stets unterschiedlichen Versuchsbedingungen und wegen der starken Abhängigkeiten von Brennstoffzusammensetzung und -struktur differieren die Meßwerte zum Teil erheblich. Die fundamentale Sammlung von Daten in /82/ zeigt dies deutlich.

### Thermisches Kriechen $\dot{\epsilon}_{cr}^{th}$

Wichtige Einflußgrößen auf das thermische Kriechen  $\dot{\epsilon}_{cr}^{th}$  sind

- Spannung
- Temperatur
- Struktur, Herstellungsverfahren
- Porosität, Korngröße
- Legierungszusammensetzung
- Stöchiometrie.

Die Abhängigkeit der Kriechrate von Spannung und Temperatur wird in den meisten Kriechgesetzen berücksichtigt und führt generell zu einem Anstieg von  $\dot{\epsilon}_{cr}^{th}$  mit steigender Temperatur und steigender Spannung. Der Einfluß der Korngröße ist erheblich, da die

Geschwindigkeit des Korngrenzengleitens mit kleinerem Korn wächst /113/. Damit erklärt sich gleichzeitig das unterschiedliche Verhalten von lichtbogengeschmolzenem (grobkörnigen) und gesintertem (feinkörnigen) Brennstoff. Der Einfluß von Verunreinigungen ist ebenfalls bedeutend, so kann durch Zugabe von 0.05 % Nickel (Sinterhilfe) bei hohen Temperaturen ein Anstieg von  $\dot{\epsilon}_{cr}^{th}$  um den Faktor  $10^2 - 10^3$  beobachtet werden /114/. Mit steigendem Kohlenstoffgehalt wächst  $\dot{\epsilon}_{cr}$  ebenfalls /90/, dagegen haben Plutonium, Zirkonium oder Sauerstoff keinen Einfluß /90, 114/.

In metallreichem Mischkarbid ist freies Metall (U,Pu) vorhanden, das niedrigschmelzende Eutektika bildet und deshalb zu einer geringeren Kriechfestigkeit führt /88/ (wie auch zu einer größeren Schwellrate). Folgende Angaben wurden verglichen:

Hall, nach Steiner /91/:

$$\dot{\epsilon}_{cr}^{th} = A \cdot \sigma^n \cdot \left\{ \exp [Bw + (Cw + Q_c)] / R \cdot T \right\} \quad (63)$$

mit  $n = f(\vartheta) - g(w)$

$\dot{\epsilon}_{cr}^{th}$  thermische Kriechrate in  $\frac{1}{h}$

w Gewichtsprozent Nickel

A, B, C Materialkonstanten

$\sigma$  Spannung in MPa

R Gaskonstante

$Q_c$  Aktivierungsenergie

T Temperatur in K

Eine etwas andere Schreibweise dieser Formel findet sich bei Matthews /90/.

Freund /93/:

$$\dot{\epsilon}_{cr}^{th} = 1.45 \cdot 10^{10} \cdot \sigma_v^{2.44} \cdot \exp(-63000/T) \quad (64)$$

mit  $\sigma_v$  Vergleichsspannung in MPa

T Temperatur in K

Caligara /94/:

$$\dot{\epsilon}_{cr}^{th} = 3.07 \cdot 10^{-9} \cdot \sigma_v^{1.79} \cdot \exp(-3465/T) \quad (65)$$

mit  $\sigma_v$  Vergleichsspannung in MPa

Tokar, nach Steiner /91/:

$$\dot{\epsilon}_{cr}^{th} = 1.49 \cdot 10^{10} \cdot \sigma_v^{2.44} \cdot \exp(-63200/T) \quad (66)$$

mit  $\sigma_v$  Vergleichsspannung in MPa

Die Formeln von Freund et al. /93/ und Tokar, Steiner /91/ sind praktisch identisch; der Spannungsexponent ist größer als 2, was sich mit den Aussagen von Matthews /90/ deckt. Die Angaben von Caligara führen dagegen zu erheblich niedrigeren Kriechraten. Die Anwendung der Formeln von Hall sowie von Billone et al. /33/, der auch den Porositäts- und Korngrößeneinfluß berücksichtigt, erscheint wegen der vielen eingehenden Parameter als zu kompliziert, so daß die Gleichung von Tokar, Steiner für URANUS übernommen wurde. Die Übereinstimmung mit den Angaben von Dienst /112/ und Routbort et al. /82/ ist gut.

#### Bestrahlungsinduziertes Kriechen $\dot{\epsilon}_{cr}^{ind}$

Wegen der relativ niedrigen Betriebstemperaturen der Karbidbrennstoffe verlangt die Berücksichtigung des bestrahlungsinduzierten Kriechens  $\dot{\epsilon}_{cr}^{ind}$  mehr Aufmerksamkeit als bei den Oxiden. Nach Clough, zitiert bei Steiner /91/, zeigt sich, daß die Kriechraten von UC im primären Bereich etwa denen der Oxide entsprechen, im Bereich des sekundären Kriechens dagegen bis zum Faktor 10 niedriger liegen. Dienst /111/ kommt etwa zu den selben Ergebnissen. Nach Matthews /90/ und Steiner /91/ nimmt die Kriechrate proportional zur Neutronendosis zu, weil  $\dot{\epsilon}_{cr}^{ind}$  proportional zur Zahl der Punktdefekte wächst. Weitere mögliche Einflußgrößen sind Temperatur, Porosität, Korngröße und Stöchiometrie. Folgende Angaben wurden miteinander verglichen:

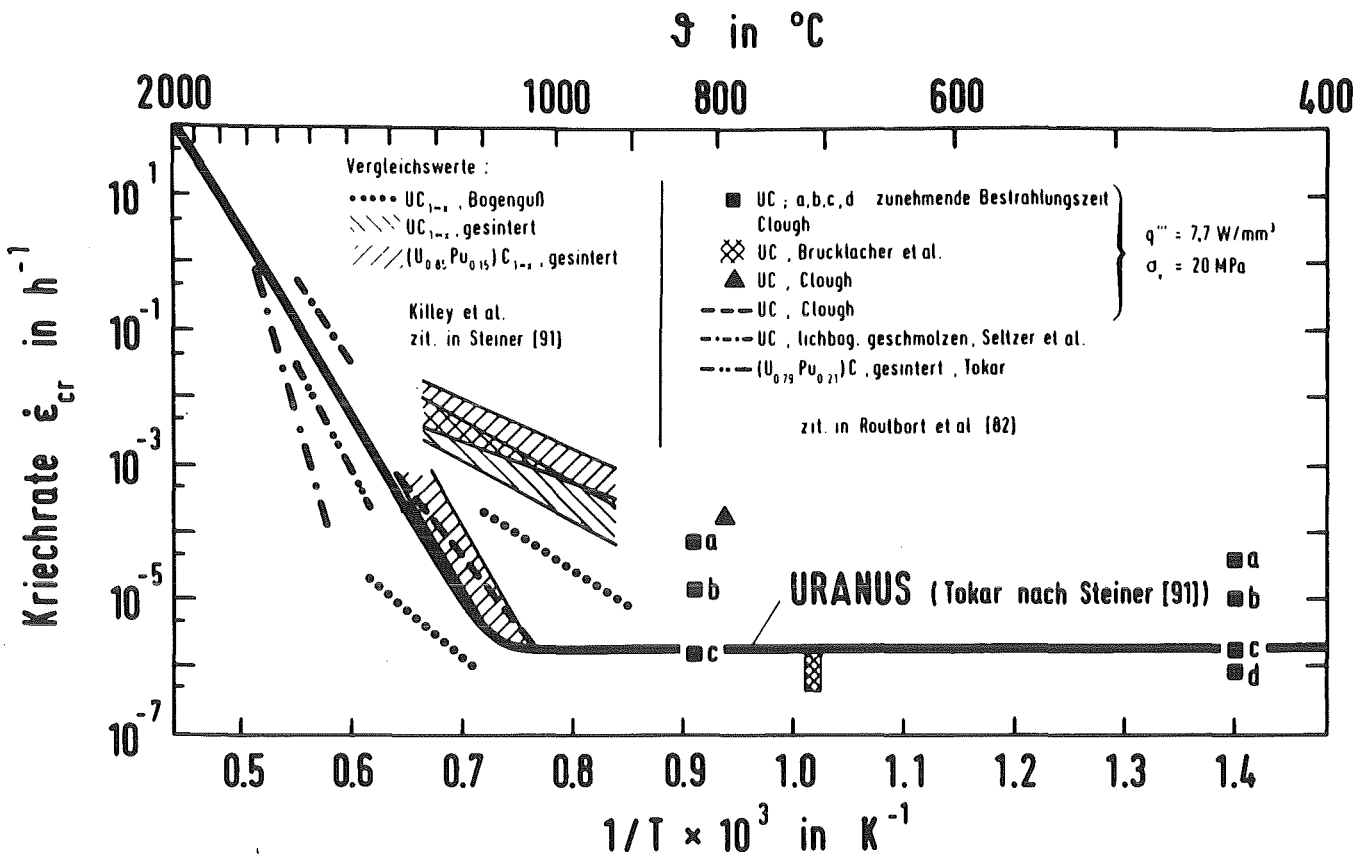


Abb. 19: Temperaturabhängigkeit des Kriechens von UC und (U,Pu)C.  
Parameter:  $\sigma_v = 40 \text{ MPa}$ ,  $q''' = 5 \text{ W/mm}^3$  bzw.  $7.7 \text{ W/mm}^3$

Steiner /91/, Matthews /90/:

$$\dot{\epsilon}_{cr}^{ind} = 1.17 \cdot 10^{-8} \cdot q''' \cdot \sigma_v \quad (67)$$

mit  $\dot{\epsilon}_{cr}^{ind}$  bestrahlungsinduzierte Kriechrate  $\frac{1}{h}$

$q'''$  Volumenleistung in  $\frac{W}{mm^3}$

$\sigma_v$  Vergleichsspannung in MPa

Caligara /94/:

$$\dot{\epsilon}_{cr}^{ind} = 1.62 \cdot 10^{-14} \cdot q''' \cdot \sigma_v \quad (68)$$

mit  $\sigma_v$  Vergleichsspannung in MPa

$q'''$  Volumenleistung in  $\frac{W}{mm^3}$

Gleichung 67 deckt sich gut mit experimentellen Daten aus /82/, so daß sie für die Karbidvariante übernommen wird.

Abb. 19 zeigt als Ergebnis die Überlagerung des thermischen und des strahleninduzierten Kriechens im Vergleich zu experimentellen Daten für eine Spannung von 40 MPa und eine Volumenleistung von  $5 \text{ W/mm}^3$  ( $\hat{=} 1.62 \text{ fiss/cm}^3 \cdot \text{s}$ ). Die angegebenen Werte für die experimentelle Serie mit  $7.7 \text{ W/mm}^3$  bei 20 MPa sind zum Vergleich also mit etwa 1.3 zu multiplizieren, wenn man eine lineare Abhängigkeit von Spannung und Leistung entsprechend Gl. 67 annimmt.

### 3.4.3.3 Spaltgasfreisetzung

Wie schon bei der Behandlung des Schwellens ausgeführt, ist das Verhalten des Spaltgases in Karbidbrennstoffen nicht mit den Oxiden vergleichbar, weil wegen des flacheren Temperaturgradienten größere Anteile Spaltgas im Brennstoff verbleiben und dort Porositätsänderungen und Schwellen hervorrufen. Nach Ronchi /115/ kann der zeitliche Verlauf der Gasfreisetzung in vier Phasen unterteilt werden:

- Sammeln von Spaltgasatomen, die durch die Brennstoffmatrix diffundieren, in Blasen. (Die Bildung von Blasenkeimen hängt von der Löslichkeitsgrenze der Gasatome im Brennstoff ab, die ihrerseits temperatur- und abbrandabhängig ist /91, 112/).
- Vereinigung der Blasen zu größeren und Beginn der Wanderung im Temperaturgradienten. (Starke Zunahme des mikroskopischen Schwellens oberhalb einer kritischen Temperatur von  $1000 - 1100 \text{ }^\circ\text{C}$  ist die Folge /116/).
- Wanderung der Gasblasen zu den Korngrenzen. (Starke Abhängigkeit von der Korngröße, die die Wanderzeit beeinflusst /117/).
- Diffusion der Blasen an den Oberflächen der Körner entlang, anschließend durch Poren und Risse aus dem Brennstoff heraus.

Aus den vorliegenden experimentellen Ergebnissen können für Kar-

bidbrennstoff zwei prinzipielle Aussagen getroffen werden:  
Nieder- und mitteldichte Brennstoffe setzen mehr Spaltgas frei  
als hochdichte /110/. Verunreinigungen behindern die Gasdiffu-  
sion und damit die Blasenbildung und auch die Blasenbeweglich-  
keit /88, 105/.

Die wichtigsten Größen, die die Spaltgasfreisetzungsrates aus  
Karbiddbrennstäben beeinflussen, sind demnach

Temperatur

Abbrand

Porosität

Korngröße

Eine Reihe von weiteren Parametern (Herstellungsart, Stöchiome-  
trie, Porengrößenverteilung, Rißbildung) haben ebenfalls deut-  
lichen Einfluß auf das Spaltgasverhalten.

Bei Durchsicht der Literatur stellt sich heraus, daß eine Reihe  
von Ansätzen zum Spaltgasverhalten der Karbide bereits unternom-  
men wurde: Kleykamp /118/ stellte Untersuchungen zum in Blasen,  
Poren und Gitter gebundenen Spaltgas an und bestimmte so die ra-  
diale Gasverteilung und Freisetzung. Vergleichbare Arbeiten lie-  
gen von Coquerelle et al. /119/ vor; analytische Modelle wurden  
beispielsweise von Prajoto et al. /117/, Caligara /94/, Bogens-  
berger und Ronchi /120/, Matthews und Wood /121/ und anderen  
entwickelt. Die meisten dieser Modelle verfolgen einen mikro-  
skopischen Ansatz (Betrachtung einzelner Blasen) und sind ent-  
sprechend aufwendig. Deshalb und wegen der Vielzahl der einge-  
henden Parameter, die nicht immer bekannt sind bzw. in URANUS  
nicht behandelt werden, und wegen der geringen Anzahl zur Ver-  
fügung stehender inpile-Daten zum Eichen der Modelle, wurde für  
die erste Entwicklung der Karbid-Variante zunächst ein einfaches  
empirisches Modell vorgesehen, das im wesentlichen auf den Er-  
gebnissen der Nachbestrahlungsuntersuchungen der Experimente  
Mol-11/K1 und K2 von Freund et al. /93/, der Kapselversuchs-  
gruppen Vg 6a und 6c von Steiner et al. /95/, der Experimente im  
DFR von Batey /122/ sowie weiterer Literaturangaben /123 - 127/  
(vgl. Tabelle 6) beruht. Die begrenzte Datenbasis muß bei der

Nr. in Abb. 20 u. 21	Experiment	Quelle	Brennstoff	Dichte	Bonding	Abbrand at %	Zentraltemp. $\vartheta_z$ °C	Spaltgasfreisetzung %
1	VG 6a KVE 94	/101/	(U,Pu)C	86,7% th.D.	He	1,4	1200	4,3
2	VG 6a KVE 102	/101/	(U,Pu)C	87,6% th.D.	He	5,08	1200	10,03
3	VG 6a KVE 103	/101/	(U,Pu)C	87,6% th.D.	He	4,85	1200	17,1
4	VG 6c KVE 114	/101/	(U,Pu)C	87,1% th.D.	Ar	2,27	1200	2,2
5	Mol-11 K1-1 TE 4,10	/93/	UC	93,5% th.D. 90,6% sm.D.	He	3,94	1500	26,5-27,6
6	Mol-11 K2-1 TE 6,7,8	/93/	(U,Pu)C	83,2% th.D. 79,9% sm.D.	He	4,14	1600	37,1
7	Mol-11 K2-1 integral	/93/	(U,Pu)C	83,2% th.D. 79,9% sm.D.	He			16,1
8	Mol-11 K2-2 TE 6,7,8	/93/	(U,Pu)C	83,2% th.D. 79,9% sm.D.	He	6,87	1450	37,1
9	MOL-11 K2-2 TE 10	/93/	(U,Pu)C	83,2% th.D. 79,9% sm.D.	He	7,05	1450	39,6
10	Mol-11 K2-2 integral	/93/	(U,Pu)C	83,2% th.D. 79,9% sm.D.	He			21,0
11	typische Werte	/123/ /124/	(U,Pu)C	niederdicht	He	10	1700	40,0
12	DFR 330/1.	/125/	(U,Pu)C	niederdicht	Na	4,82	1400	15,3-17,6
13	CV 012	/122/	(U,Pu)C	81% sm.D.	He	3	1650	27
14	CV 1285	/122/	(U,Pu)C	80% sm.D.	He	6,9	1820	30,2
15	CV 1299	/122/	(U,Pu)C	78% sm.D.	He	6,9	1810	31,2
16	CV 1300	/122/	(U,Pu)C	77% sm.D.	He	6,9	1810	33,0
17	CV 1554	/122/	(U,Pu)C	71% sm.D.	He	4,7	1830	42,4
18	CV 1557	/122/	(U,Pu)C	70% sm.D.	He	4,7	1830	51,2
19	CV 135	/122/	(U,Pu)C	78% sm.D.	He	1,7	2130	76,7
20	a)	/126/	(U,Pu)C	82% sm.D.	He	7		16-17,8
	b)			85% sm.D.	Na	7,2		2,5
21	a)	/127/	(U,Pu)C	hochdicht	He			1
	b)			niederdicht		11		37
22	versch. Exp.	/127/	(U,Pu)C	88-99% th.D.	Na	2,4-11		3,2-21,3
23		/108/			He		1000	3
24		/88/				4	850	0
25		/111/	(U,Pu)C	hochdicht	He	5-10 12-13	bis 850 > 900	< 1 28-30
26		/111/	UC			ab 10 ab 5 2-3	900 1200 1100-1200	erhöhte Freis. erhöhte Freis. 1-10
27	Schätzwerte	/111/	UC			2-3	1500-1700	10-30
28		/111/	UC	80-85% th.D.		2-3		4-10
29	Mol-11 K2-3	/125/	(U,Pu)C	83% th.D.	He	ab 0,7		erhöhte Freis.
30	Mol-11 K2-2	/125/	(U,Pu)C	83% th.D.	He	ab 2	1450	erhöhte Freis.
31	Mol-11 K2-3	/125/	(U,Pu)C	83% th.D.	He	6,38		24
32	Mol-15	/107/	(U,Pu)C		Na	9	1100-1350	14-27

Tabelle 6: Übersicht der ausgewerteten Literaturstellen zur Spaltgasfreisetzung



Anwendung des Modelles zur Interpretation von Experimenten natürlich berücksichtigt werden.

Die meisten Ergebnisse liegen für He-gebundene, niederdichte (um 83 % th. D.) bis mitteldichte (um 90 % th. D.) Mischkarbidstäbe vor. Der Einfluß der Porosität auf das Freisetzungsverhalten wird in der Regel jedoch nur qualitativ beschrieben (vgl. z. B. Zimmermann /110/); demzufolge neigen niederdichte Brennstäbe zu höherer Spaltgasfreisetzung als hochdichte, weil sich die Gasblasen an den Korngrenzen leichter vereinigen können. Auch der Einfluß der Korngröße auf die Gasfreisetzungsrates wird von Prajoto /117/ als erheblich und sogar wesentlicher als den der Temperatur gehalten, da die Gasatome bei kleinerem Korndurchmesser viel geringere Wege bis zur Korngrenze zurücklegen müssen, von wo sie freigesetzt werden.

Bei den Mol-11-Experimenten zeigte sich bei der kontinuierlichen Messung des Druckaufbaues im Brennstab, daß die Spaltgasfreisetzung erst ab einem bestimmten Abbrand überhaupt einsetzt, nachdem eine gewisse Sättigung an Spaltgas im Brennstoff erreicht ist (Freund /93/). Das je nach den Temperaturverhältnissen früher oder später auftretende Aufreißen der Korngrenzen infolge gegenseitiger Blasenberührung ("breakaway") führt zu einer plötzlichen Erhöhung der Freisetzungsrates. Leider lassen sich nur wenige Daten finden, die diesen Zeitpunkt genau beschreiben: Beim Stab K2-2 (Zentraltemperatur 1450 °C) setzt die Freisetzung ab 2 % Abbrand ein /93/, beim Stab K2-3 (Zentraltemperatur sehr hoch) ab 0.7 % Abbrand /128/. Weitere Werte finden sich bei Dienst /111/, der erhöhte Spaltgasfreisetzung bei Zentraltemperaturen von 900 °C ab 10 % Abbrand angibt sowie bei 1200 °C ab 5 % Abbrand. Diese Angaben gelten für hochdichten Brennstoff. Steiner /91/ stellte bei Temperaturen von 800 °C erste optisch sichtbare Blasen ( $r \geq 0.2 \mu\text{m}$ ), die als Indiz für Porenschwellen angesehen werden, erst bei 8.8 % Abbrand fest; nach Nickerson et al. /88/ gibt es für jeden Abbrand eine bestimmte Temperatur, ab der das Gasschwellen (und damit die Gasfreisetzung) einsetzt. Matzke und Ronchi /105/ geben als Löslichkeitsgrenze, oberhalb der sich Blasenkeime bilden,  $10^{-9}$  bis  $10^{-8}$  Gasatome pro Atom Uran an (bei 1000 °C, ohne Bestrahlung). Durch Bestrahlung wird

das Lösungsvermögen aber stark erhöht.

Trotz dieser wichtigen Gesetzmäßigkeiten konnte - wegen der insgesamt geringen Zahl von auswertbaren inpile-Experimenten, bei denen in der Regel Angaben über Abbrand und Zentraltemperatur bereits Ausnahmen waren und sonstige Eigenschaften nur sporadisch erwähnt sind - bei der Aufstellung des Modelles nur die Abhängigkeit von Temperatur, Abbrand und Beschreibung des "breakaway"-Effektes berücksichtigt werden. Eine Unterscheidung in Karbid- und Mischkarbidbrennstoff wurde ebenfalls nicht getroffen. Das Modell gilt nur für quasi-stationäre Bestrahlungsgeschichten.

### Beschreibung des Modells

Das Modell gibt in Abhängigkeit von Zentraltemperatur  $\vartheta^*(z)$  und Abbrand  $w$  die mittlere Freisetzungsrate  $f^{\text{gas}}(z,t)$  für den betrachteten Zeitpunkt  $t$  und die axiale Position  $z$  eines Brennstabes an. Temperatur- und Abbrandabhängigkeit werden wie folgt miteinander verknüpft:

$$f^{\text{gas}}(z,t) = f^{\vartheta}(z) \cdot f^{\text{bu}}(z,t) \quad (69)$$

Für die Temperaturabhängigkeit  $f^{\vartheta}(z)$  der Spaltgasfreisetzung wurden drei typische Bereiche festgelegt: Unterhalb  $900^{\circ}\text{C}$  Zentraltemperatur findet analog zu den Ergebnissen von Zimmermann /110/ praktisch keine Spaltgasfreisetzung statt, oberhalb  $900^{\circ}\text{C}$  bis  $1800^{\circ}\text{C}$  wird die Freisetzungsrate durch eine Gerade beschrieben, die oberhalb  $1800^{\circ}\text{C}$  mit steilerer Steigung verläuft.

$$\left. \begin{aligned} f^{\vartheta}(z) &= 0 && \text{für } \vartheta^*(z) < 900^{\circ}\text{C} \\ f^{\vartheta}(z) &= 0.000467 \cdot \vartheta^*(z) - 0.4203 && \text{für } 900^{\circ}\text{C} < \vartheta^*(z) < 1800^{\circ}\text{C} \\ f^{\vartheta}(z) &= 0.001050 \cdot \vartheta^*(z) - 1.4697 && \text{für } \vartheta^*(z) > 1800^{\circ}\text{C} \end{aligned} \right\} (70)$$

Abb. 20 zeigt die Temperaturabhängigkeit im Vergleich zu experimentellen Ergebnissen. In der Literatur gibt es für Zentraltemperaturen  $\vartheta^*(z) > 1800^{\circ}\text{C}$  kaum Hinweise auf das Freisetzungverhalten. Einziger Hinweis ist das Experiment CV 135 /122/ mit

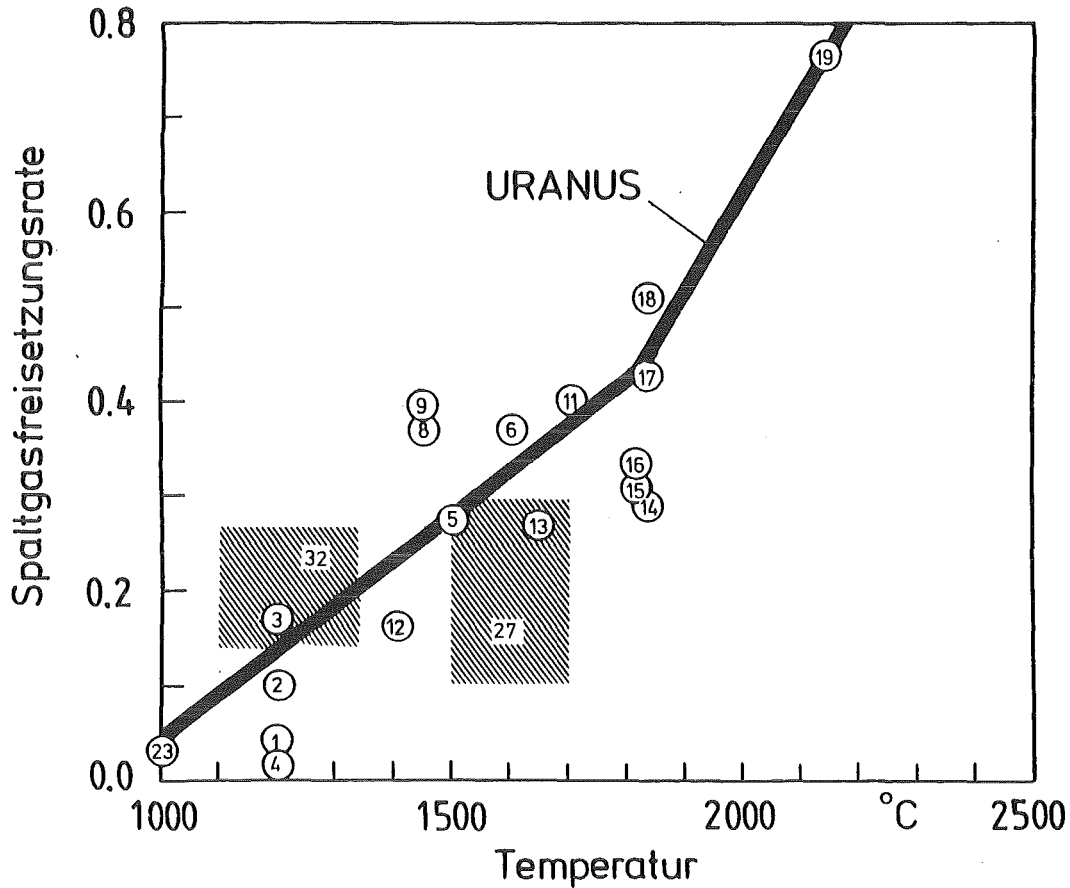


Abb. 20: Spaltgasfreisetzung als Funktion der Temperatur;  
 Meßwerte s. Tabelle 6.

76.7 % Freisetzung bei 2130 °C und 1.7 % Abbrand; dies deutet auf ein Ansteigen der Freisetzungsrates bei Temperaturen, die gegen den Schmelzpunkt gehen.

Zur Berücksichtigung des Abbrandeinflusses  $f^{bu}$  wurde die Temperaturabhängigkeit (Gl. (70)) mit Meßwerten bei niedrigem und hohem Abbrand verglichen. Es wurde angenommen, daß sich die Spaltgasfreisetzungsrates bei höheren Abbränden einem stabilen Wert annähert:

$$f^{bu}(z,t) = 1 - \exp[-1.5(bu - bu^{frei})] ; bu \geq bu^{frei} \quad (71)$$

mit  $bu$  % Abbrand  
 $bu^{frei}$  % Abbrand, bei dem Spaltgasfreisetzung einsetzt

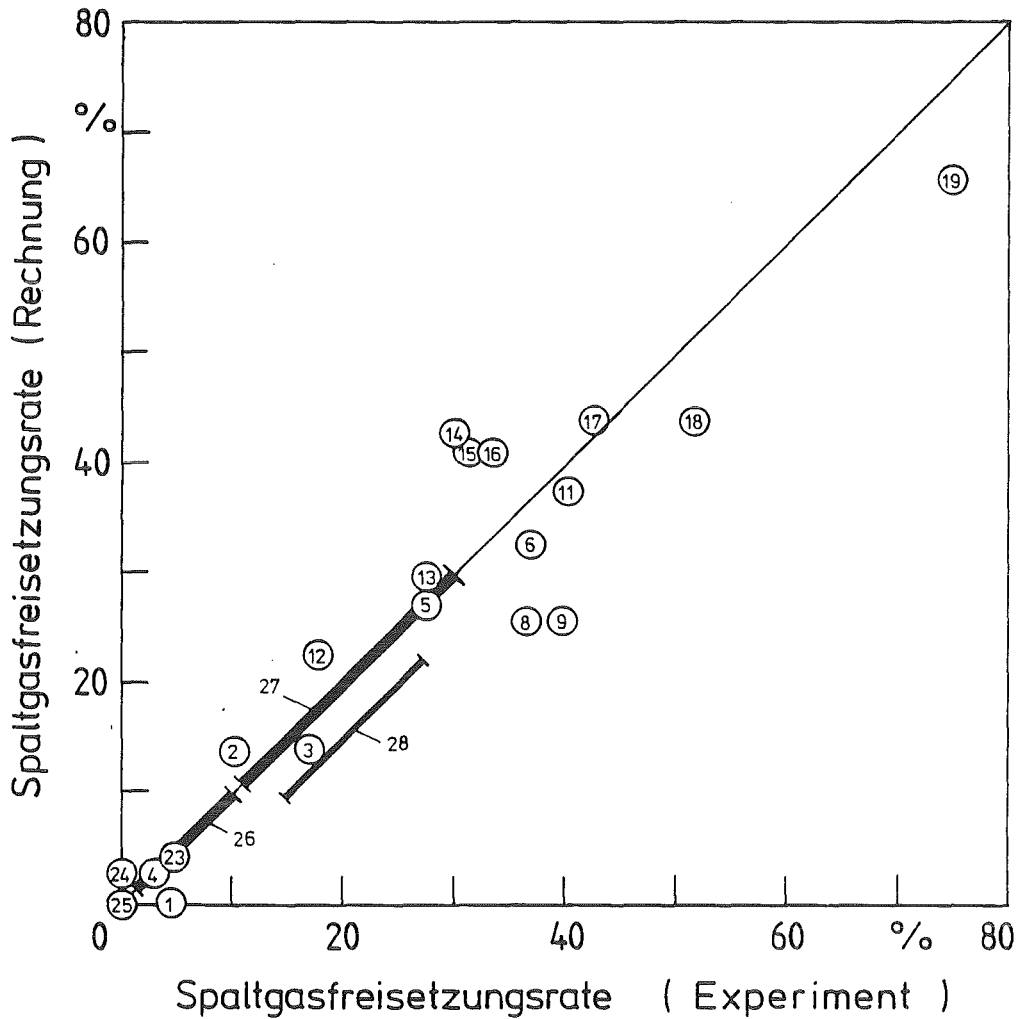


Abb. 21: Vergleich gemessene/gerechnete Spaltgasfreisetzungsrates; Meßwerte siehe Tabelle 6.

Die Größe  $bu^{frei}$  gibt den durch den "breakaway"-Effekt verzögerten Einsatz der Spaltgasfreisetzung an; man kann sie auch mit einer Inkubationszeit vergleichen. Solange keine genaueren Daten vorliegen, wird zur Bestimmung von  $bu^{frei}$  ein empirisches Gesetz verwendet, das auf den Ergebnissen der Mol-11-Experimente beruht:

$$\left. \begin{aligned} bu^{\text{frei}} &= 2 && \text{für } \mathcal{S}^*(z) < 1455 \text{ }^\circ\text{C} \\ bu^{\text{frei}} &= -0.0023 \mathcal{S}^*(z) + 5.3504 && \text{für } 1455 \text{ }^\circ\text{C} < \mathcal{S}^*(z) < 2325 \text{ }^\circ\text{C} \\ bu^{\text{frei}} &= 0 && \text{für } \mathcal{S}^*(z) > 2325 \text{ }^\circ\text{C} \end{aligned} \right\} (72)$$

Abb. 21 zeigt Ergebnisse des temperatur- und abbrandabhängigen Modells im Vergleich mit den experimentellen Daten.

Die erhaltene Funktion wird im Rahmen der URANUS-Spaltgasrechnung zur Berechnung der in den Spalt freigesetzten Molmengen verwendet; aus der axialen Summation über alle Positionen  $z$  wird die integrale Gasmenge und die integrale Freisetzungsrates bestimmt. Es wird angenommen, daß die Freisetzung irreversibel ist und daß steigende Freisetzungsrates auch Gasanteile freisetzen können, die zu früheren Zeitpunkten eingelagert wurden. Eine ausführliche Darstellung findet sich in /34/. Es wird angenommen, daß die Spaltgase im wesentlichen durch die Edelgase Xenon und Krypton beschrieben werden können, die zueinander im Verhältnis  $\text{Xe/Kr} = 0.83/0.17$  stehen /119/.

#### 3.4.4 Diskussion

Die vorstehenden Abschnitte geben einen Überblick über den Stand des Wissens bei der Modelltheorie der Karbid-Brennstoffe. Das entscheidende Problem einer solchen Zusammenstellung liegt dabei in der Wahrung der Konsistenz der aus unterschiedlichsten Quellen stammenden Daten. Wegen des wissenschaftlich und finanziell sehr erheblichen experimentellen Aufwandes und des strengen Schutzes der Ergebnisse hat die Modelltheorie häufig keinen direkten Zugang zum Experiment. Auf ein hieraus folgendes weiteres Problem sei deshalb hingewiesen: Einerseits handelt es sich um sehr komplizierte Vorgänge, andererseits verbietet die weite Streuung der wenigen experimentellen Ergebnisse die Suche nach Zusammenhängen höherer Ordnung. Die Lösung des Problems wurde im Rahmen der vorliegenden Arbeit in der hier allein möglichen ingenieurmäßigen Beschränkung auf schlichte Formeln gesucht.

Nach Implementierung der Karbid-Variante in den URANUS-Code wurden eine Reihe von Rechnungen durchgeführt, die durchweg die Eignung des erweiterten Code-Systems zur Beschreibung typischer Bestrahlungsabläufe zeigten (vgl. /97, 129/). Diese Ergebnisse beziehen sich zunächst nur auf quasi-stationäre Belastungen. Rechnungen zu schnellablaufenden Transienten werden erstmals mit dieser Arbeit vorgelegt (Kapitel 4.2). Hierbei muß derzeit noch auf Aussagen zum transienten Schwellen und zur transienten Gasfreisetzung verzichtet werden, da die entwickelten Modelle nur für quasi-stationäre Bestrahlungsgeschichten geeignet sind. Infolgedessen werden die angestellten Rechnungen nur für frischen Brennstoff durchgeführt.

#### 4. Rechnungen und Interpretation

Die Entwicklungen in Kapitel 3 wurden in Angriff genommen, um Brennstäbe unter instationären Bedingungen zu analysieren. Im folgenden soll gezeigt werden, daß das so entstandene Rechenprogramm mit gutem Erfolg auf Experimente und zur Analyse des Stabgeschehens angewendet werden kann. Neben detaillierter Anwendung auf Oxid- und Karbidstäbe kann ein genereller Vergleich der beiden Konzepte durchgeführt werden.

##### 4.1 Transiente Untersuchungen am Oxidstab:

###### Analyse der Mol 7c - Sicherheitsexperimente

Zur Beantwortung der Frage nach der Möglichkeit einer raschen Schadensausbreitung bei lokalen Kühlungsstörungen wird vom Kernforschungszentrum Karlsruhe (KfK) und dem C.E.N./S.C.K.Mol die Experimentserie Mol-7c durchgeführt /53, 130/. Ziele des Versuchsprogrammes sind dabei, Aussagen zum Einfluß einer örtlichen Kühlungsstörung auf das Verhalten der Brennstäbe und der Kühlung in einem Bündelverband zu gewinnen, insbesondere zur Frage der Stab-zu-Stab-Schadenspropagation und einer möglichen Ausdehnung der örtlichen Störung auf den Bündelquerschnitt (hydrodynamische Instabilität) /131/. Weiter sollen Aussagen zum Verhalten eines Brennstabbündels bei Übergang auf partielles Stabschmelzen gewonnen werden, sowie Detektionsmethoden zur frühzeitigen Erkennung von örtlichen Störungen und Schäden erprobt werden.

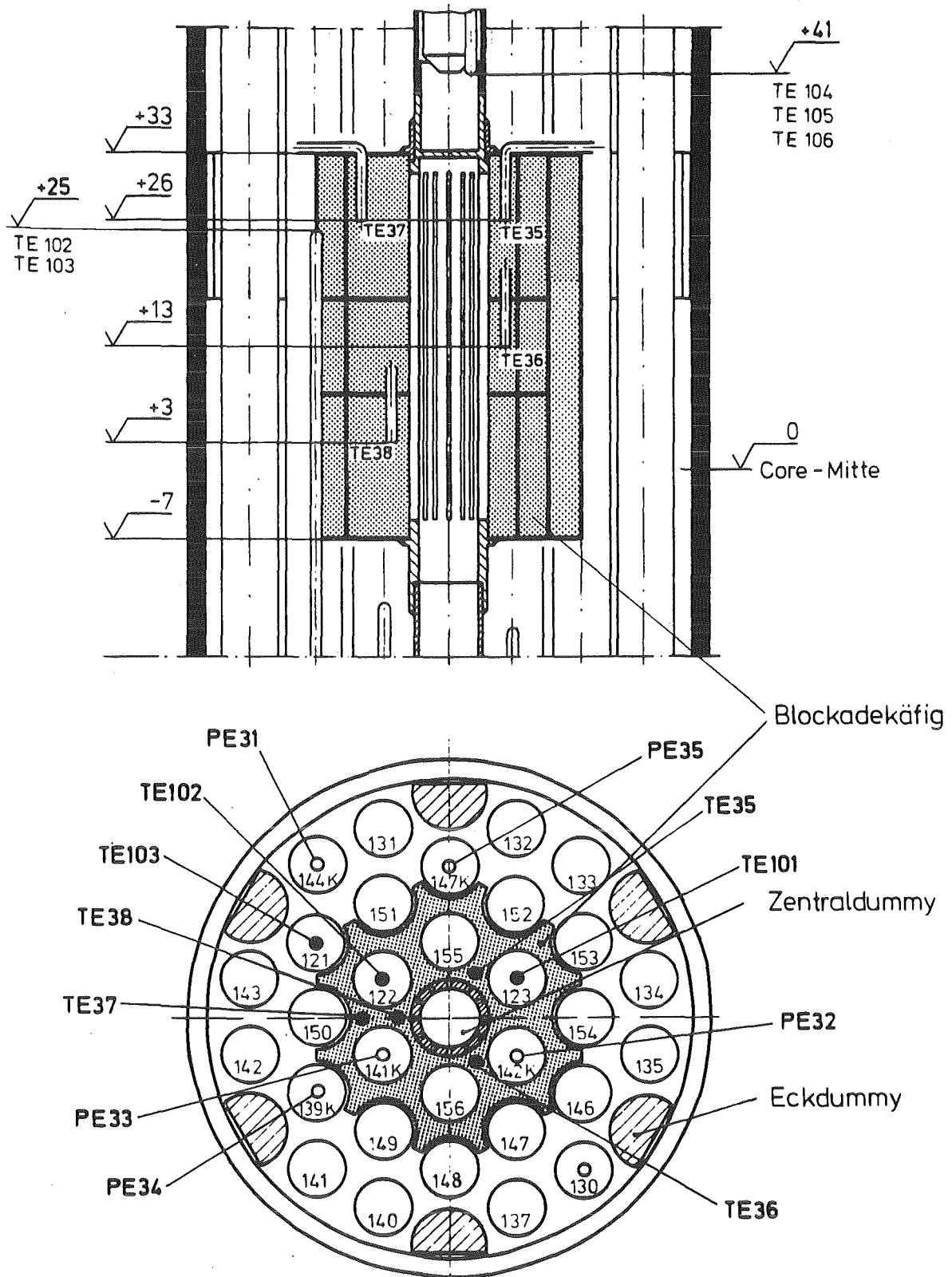
In bisher 3 (ähnlichen) Experimenten, von denen die ersten beiden die Nachuntersuchung in den heißen Zellen bereits durchlaufen haben (Mol-7c/1 und Mol-7c/2), wurde deshalb ein 37-Stabbündel, das in wesentlichen Punkten mit dem SNR-300 Mark Ia-Brennelement übereinstimmt, im epithermischen Fluß des BR2-Reaktors in Mol bestrahlt. Charakteristisch ist dabei der Einbau einer künstlichen lokalen, porösen Blockade in das Stabbündel, die das Einleiten von Siedevorgängen ermöglicht. Um Überhitzungen während der Vorbestrahlungsphase zu vermeiden, wird die Blockade durch eine besondere Vorrichtung zusätzlich gekühlt. Die eigentliche transiente Versuchsphase wird dann durch Unterbrechen der

Zusatzkühlung eingeleitet. Die Blockade besteht dabei aus einem mit Stahlkugeln gefüllten Käfig, der die innere Stabreihe voll und die mittlere Stabreihe zum Teil umfaßt (vgl. Abb. 22). Die Blockade erstreckt sich etwa in der axialen Mitte des Brennelementes über 40 mm und ist radial auf etwa 35 % des freien Bündelquerschnittes ausgelegt. Die experimentelle Anordnung, die Spezifikationen und Randbedingungen, Versuchsdurchführung und Beschreibung der Vorversuche sind ausführlich in /130/ dargelegt, experimentelle Resultate in /132, 133/.

Im folgenden sollen deshalb nur die charakteristischen Abläufe kurz skizziert werden, um die anschließenden Betrachtungen besser verständlich zu machen.

Die Experimente werden in einem speziellen in-pile Loopeinsatz mit primärem Natriumkreislauf durchgeführt, der in das Core des thermischen Reaktors BR-2 eingebracht wird. Durch eine Cadmium-Abschirmung wird innerhalb des Einsatzes ein epithermischer Fluß und durch unterschiedliche Anreicherungen eine - von Schiefplast abgesehen - gleichmäßige Leistungserzeugung eingestellt. Wichtigster Teil der Teststrecke ist das Stabbündel, das aus 30 Brennstäben, einem zentralen Dummyrohr und sechs Dummyeckstäben besteht (vgl. Abb. 22). Durch das Zentralrohr wird Natrium mit Kühlmittelintrittstemperatur (ca. 380 °C) bis in die Blockade geführt, so daß dort während der Vorbestrahlungsphase keine unzulässig hohen Temperaturen herrschen. Die ca. 300 Stunden dauernde Vorbestrahlung mit zyklischer Reaktorleistung dient zur Konditionierung des Brennstoffes, d. h. es stellen sich typische Effekte wie Zentralkanal, Brennstoffreißen und Relocation ein. Es wird ein maximaler Abbrand von 2,5 MWd/to erreicht. Während der Vorbestrahlung wurde probeweise mehrfach die Zusatzkühlung der Blockade unterbrochen, zuletzt bei voller Leistung (nur Mol-7c/1). Dabei reduziert sich der Kühlmitteldurchsatz in der Blockade auf etwa 10 % des nominellen Wertes /134/. Obwohl die Kühlmittelgeschwindigkeit im Testbündel mit etwa 2 m/s nur den halben des für den SNR-300 vorgesehenen Wertes erreicht, trat während dieses im folgenden als "Vortransiente" bezeichneten Tests kein lokales Natriumsieden auf. Durch eine Zurücknahme der Leistung und Wiedereinschalten der Zusatzkühlung wurde die Vor-





- TE 35 - TE 38    Thermoelemente in der Blockade
- TE 101 - TE 103    Zentraltemperatur - Thermoelement im Brennstab
- TE 104 - TE 106    Thermoelemente im Zentraldummy
- PE 31 - PE 35    Brennstab - Innendruck - Überwachung

Abb. 22: Experimentalanordnung Mol-7c/2 (nach /133/).

transiente abgebrochen, anschließend der nominelle Kühlmitteldurchsatz nochmals halbiert, und bei voller Leistung erneut die Zusatzkühlung unterbrochen. Nun kam es zu Siedevorgängen, Dryout, Hüllrohrschäden und Durchschmelzen der Blockade. Abb. 23 zeigt die Leistungs- und Durchflußgeschichte unter Hinweglassung des Zyklusbetriebes, Tabelle 7 Vergleichsdaten zur Haupttransiente und Abb. 24 einen Querschliff des Mol-7c/1-Bündels im Bereich der Blockade. Der zerstörte Bereich ist gut zu erkennen und zeichnet sich durch einen breiten Ring wiedererstarteten Stahles aus, der in etwa den Zentralbereich umschließt. Etwa 20 Sekunden nach Einleiten des Experimentes hat sich eine wieder kühlbare Konfiguration bei stationären Bedingungen eingestellt.

Während die kontinuierlich meßbaren Signale aus der Anordnung (Thermoelement, Druckaufnehmer, Durchsatzmessung, Siedegeräuschmessung, DND-Messung) wegen der beschränkten Meßmöglichkeiten praktisch keine Aufschlüsse über das Brennstoffverhalten liefern können, gibt die Nachbestrahlungsuntersuchung eine "Momentaufnahme", der zwar viele Details entnommen werden können, die aber nur wenig Aussagen zur Kinetik der Abläufe geben kann, insbesondere wenn infolge Hüll- und Brennstoffschmelzen die ursprüngliche Konfiguration im interessierenden Bereich weitgehend zerstört ist. Zur vollständigen Beschreibung eines Experimentes sind deshalb begleitende und anschließende theoretische Untersuchungen notwendig. Die bisherigen theoretischen Arbeiten zur Analyse der Experimente Mol-7c/1 und Mol-7c/2 konzentrieren sich im wesentlichen auf thermo-hydraulische Probleme (Rechenprogramme SABRE, THESYS, TIGER, BACCHUS /135-138/). Eigentliche Brennstabanalysen zur Transiente werden dagegen erstmalig mit dieser Arbeit vorgelegt. Die Anwendung des URANUS-Systems bietet sich dabei deshalb an, weil der langjährige Entwicklungsschwerpunkt bei der Untersuchung von Transienten liegt und ein Modell zur Kühlkanalblockade entwickelt werden konnte (vgl. Kapitel 3.1 und 3.2).

Da ein integraler Brennstabcode nur einzelne Stäbe, jedoch keine Stabbündel behandeln kann, wurden drei repräsentative Stäbe des 37-Stabbündels analysiert, je ein Stab aus der inneren (blockierten) Reihe mit und ohne Thermoelementbohrung sowie ein

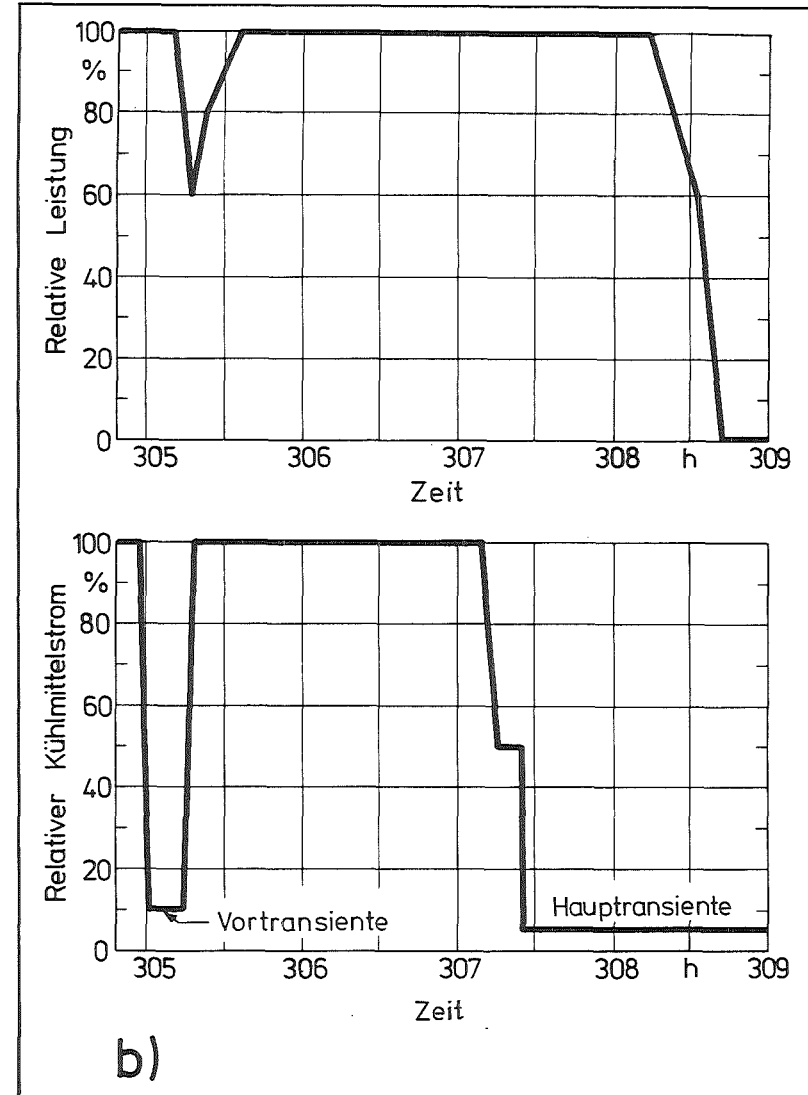
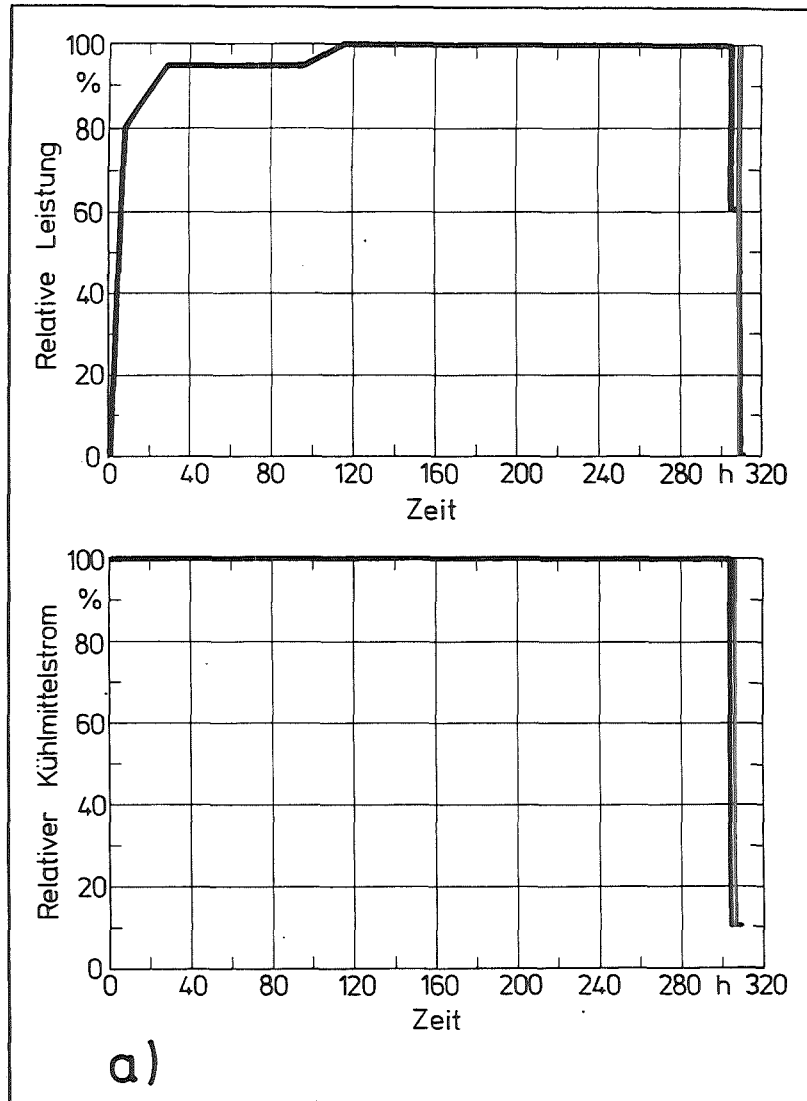


Abb. 23: Zeitlicher Verlauf der Leistung und des Kühlmittelstromes für Mol-7c/1 in der Mitte der Blockade. a) gesamte Bestrahlung, b) Ausschnitt Vor- und Haupttransiente

		Mol 7C/1	Mol 7C/2
Siedetemperatur	nach	10,0	4,4
Dryoutbeginn	nach	12,6	6,4
Hüllrohrschäden	nach	12,6	6,3
verzögerte Neutronen	nach	14,1	8,0
Stahlschmelztemperatur	nach	15,0	7,7
Stabil. Bündeldurchsatz und Austrittstemperatur	nach	200	80
Reaktorbetrieb		2880	360

Tabelle 7: Vergleichsdaten zur Transiente (aus /53/). Zeitangaben in Sekunden. Unterschied Mol-7c/1 zu Mol-7c/2 infolge anderer Ventilschließzeiten.

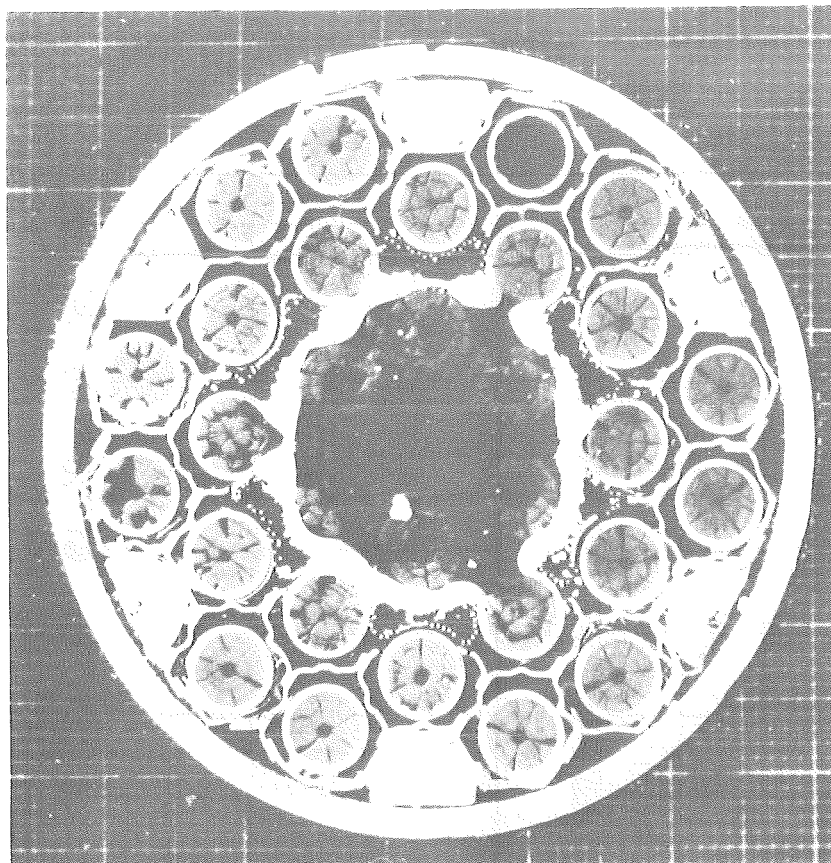


Abb. 24: Querschliff durch das Testbündel Mol-7c/1 im Bereich der lokalen Blockade (aus /53/).

Randstab der äußeren Reihe als Referenz. Im folgenden wird im wesentlichen das Verhalten der Stäbe der inneren Reihe diskutiert werden; die Nomenklatur bezieht sich auf die in Kapitel 3.1, 3.2 eingeführten Größen.

Abb. 25 zeigt die verwendete Diskretisierung sowie das axiale Leistungsprofil, im Bereich der Blockade wurde eine besonders feine Teilung gewählt. Die Kühlkanalfläche  $F_0$  wurde aus den

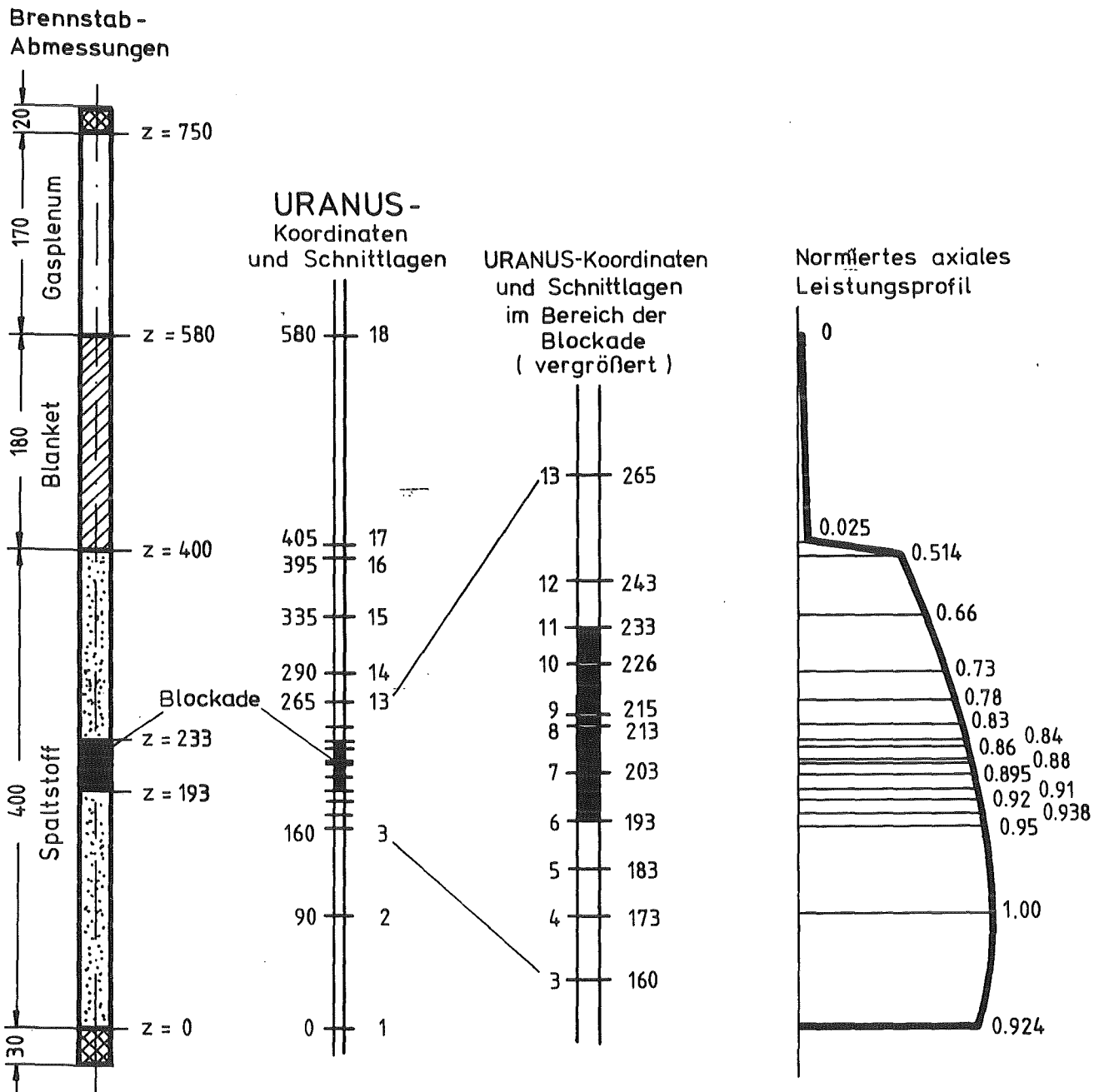


Abb. 25: Axiale Geometrie und Leistungsprofil

Stabradien und dem Abstand der benachbarten Stäbe unter Annahme hexagonaler Konfiguration bestimmt. Als Blockadelänge ( $2 \cdot \Delta x$ ) wurde die axiale Ausdehnung von 40 mm übernommen, die Formfaktoren  $\varphi_1$  und  $\varphi_2$  wurden durch Analyse von hydraulischen Vorversuchen (/134/), die den Beginn der Störung erst knapp unterhalb der Blockade, das Ende der Störung jedoch deutlich oberhalb des Blockadebereiches anzeigten, zu  $\varphi_1 = 10$  mm und  $\varphi_2 = 40$  mm bestimmt. Aus der Vorbestrahlungsphase ergibt sich für die Einzelstabbetrachtung ein Kühlmittelstrom von 0.06 bzw. 0.055 kg/s für die beiden Experimente, was mit dem Bündeldurchsatz von etwa 2 kg/s und der Stabzahl 37 (30 heizende) gut harmonisiert. Neben den Vorversuchsergebnissen /134/ kann auch aus der Analyse der Vortransiente auf eine Restströmung  $a_0 \approx 10$  % bei abgestellter Zusatzkühlung geschlossen werden, womit sich ein axiales Kühlmittel-Massenstromprofil gemäß Abb. 9 einstellen läßt.

Für den stationären Teil des Experimentes wird ein zusätzlicher Kühlmittelstrom eingespeist, der die Blockade nahezu auf Kühlmittelintrittstemperatur herabkühlt. Entsprechend wurde der charakteristische Schnitt  $k^*$  für den Bereich der Blockade also gleich 1 gewählt. Für das oberhalb der Blockade wieder hinzutretende Kühlmittel, das von "fiktiven" anderen Stäben erwärmt wird, wurde der Schnitt 6 (direkt unterhalb der Blockade) als Referenzschnitt  $k^*$  gewählt. Aus Voruntersuchungen zum Experiment (Wiegen) ergibt sich, daß die Kugelschüttung im Bereich der Blockade 60% des zur Verfügung stehenden Kühlkanals einnimmt. Dies muß näherungsweise auch für die angenommene Einzelstabblockade gelten. Zur Berücksichtigung der Wärmekapazität der Kugelschüttung wurde deshalb etwas vereinfachend angenommen, daß das Blockade-Strukturvolumen etwa die Hälfte des Kühlkanalvolumens beträgt.

Es muß hervorgehoben werden, daß alle Eichungen des parametrischen Modelles zur Kühlkanalblockade ausschließlich an der stationären Vorbestrahlung und an der Vortransiente durchgeführt wurden. Dies ist eine wesentliche Bedingung für die Voraussage von Abläufen, bei denen noch keine experimentelle Erfahrung einer Haupttransiente vorliegt.

Abb. 26 zeigt den typischen axialen Verlauf der Kühlmitteltemperatur und der Brennstofftemperatur für die stationäre Vorbestrahlung und die Vortransiente Mol-7c/1. Die Störung der Temperaturen infolge der Blockade bzw. Zusatzkühlung ist deutlich zu erkennen.

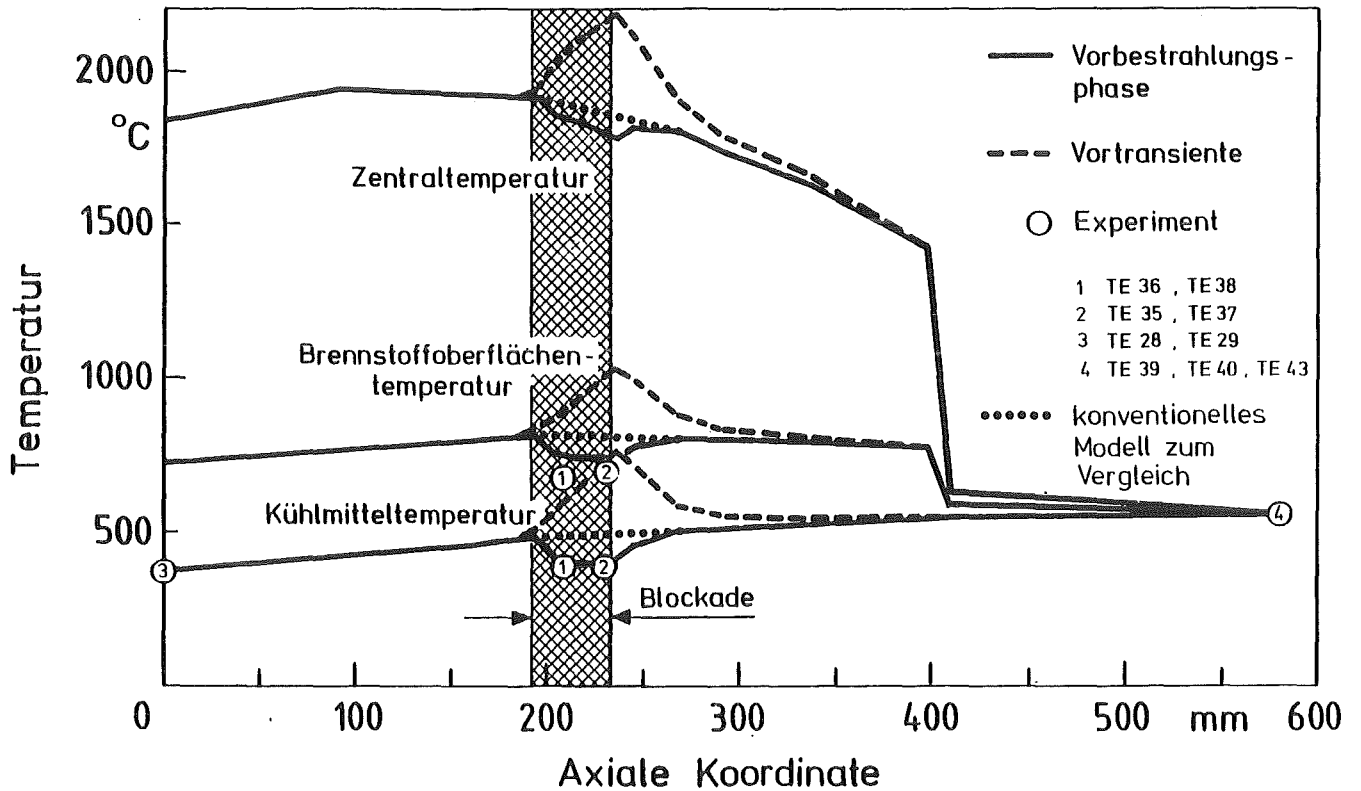


Abb. 26: Zentraltemperatur, Brennstoffoberflächen- und Kühlmitteltemperatur während der Vorbestrahlungsphase und der Vortransienten für Mol 7c/1; Vollstab, Stabtyp 1.

Es ist sofort ersichtlich, daß ein konventionelles Modell ohne Berücksichtigung der Blockade bei Anwendung auf dieses Experiment versagen wird. Abb. 27 zeigt dies am Beispiel der Zentralkanalradien für Mol-7c/1, die im Gegensatz zu früheren konventionellen Rechnungen /139/ einen deutlichen Einbruch im Blockadebereich zeigen, der nicht allein auf das Überschreiten des Leistungsmaximums zurückgeführt werden kann. Vielmehr zeigt sich hier eine Konsequenz der Zusatzkühlung. Unter Verwendung des Porenwandermodelles nach Kapitel 3.3 und des Blockademodelles nach Kapitel 3.2 kann damit der experimentelle Befund theoretisch nachvollzogen werden. Wegen der kurzen Einwirkungszeit von Vor- und

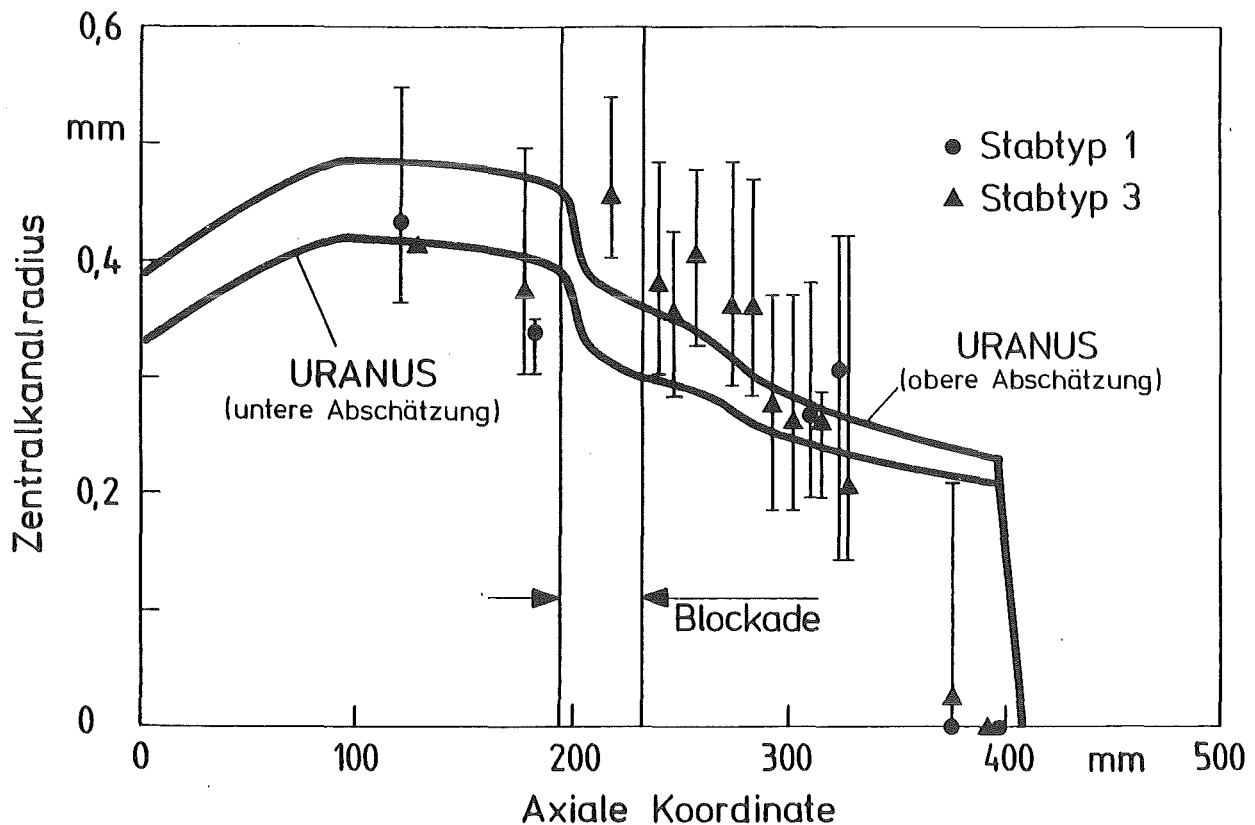


Abb. 27: Zentralkanalradius in Abhängigkeit von der axialen Koordinate; Vergleich Rechnung mit Experiment Mol 7C/1.



Haupttransiente ergeben sich keine Veränderungen der Brennstoffstrukturen; die für die Konditionierung des Brennstoffes angesetzten 300 Stunden werden auch theoretisch bestätigt. Abb. 28 zeigt typische Strukturradien, wie sie sich aus dem Modell nach Kapitel 3.3 ergeben, im Vergleich zu einer intakt gebliebenen Stelle eines inneren Stabes kurz unterhalb der Blockade. Es ergeben sich recht zufriedenstellende Übereinstimmungen, die die Modellannahmen bestätigen.

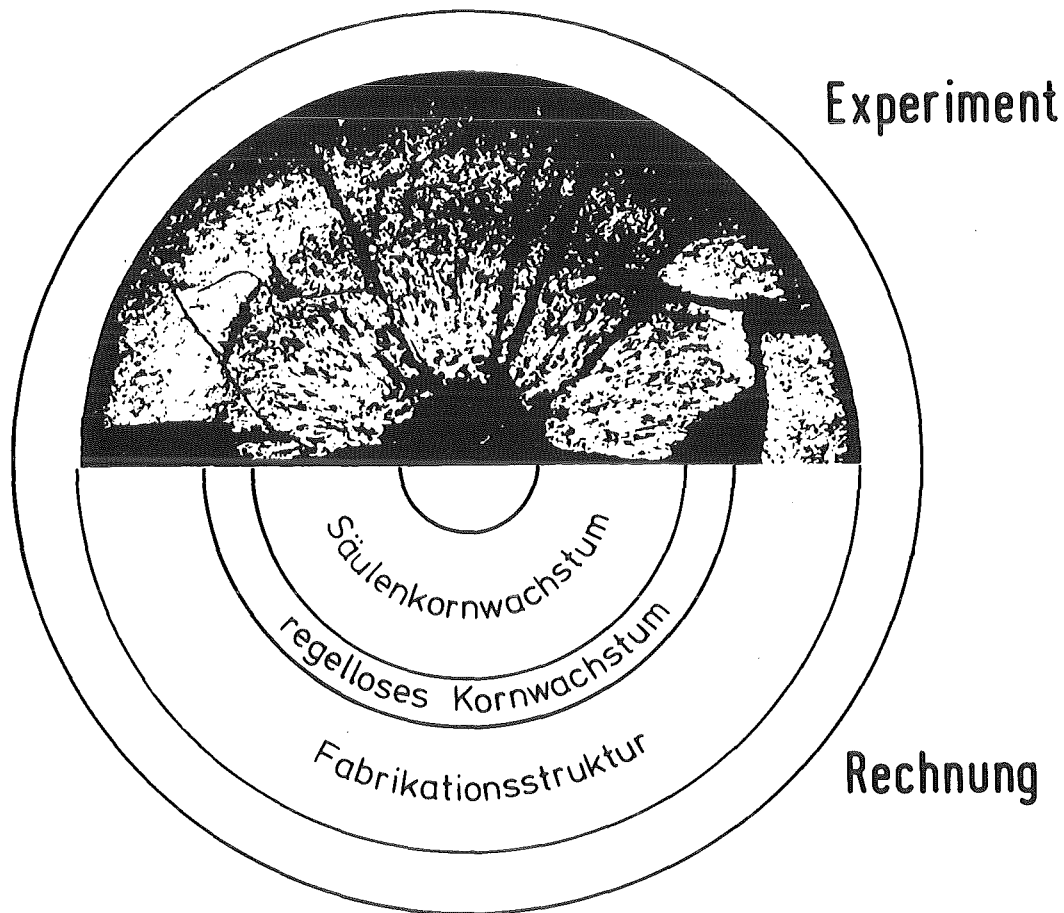
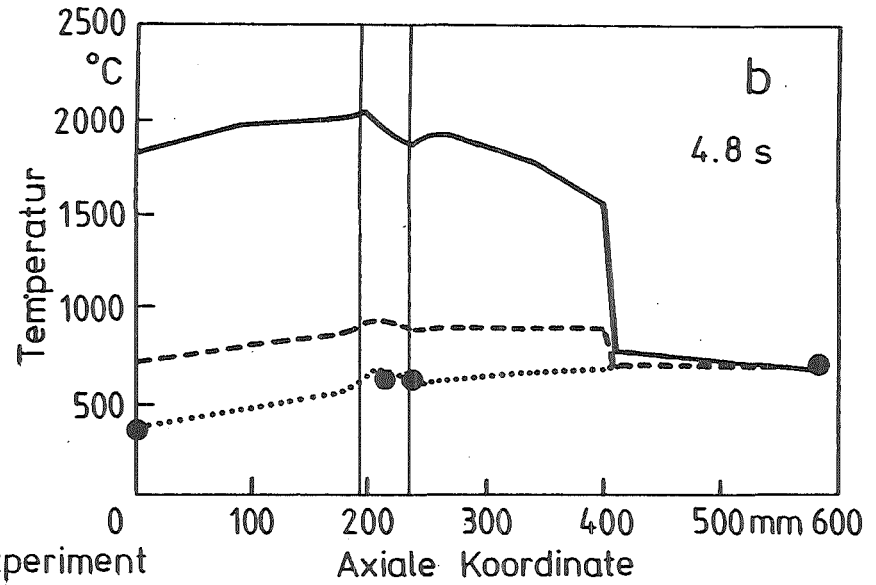
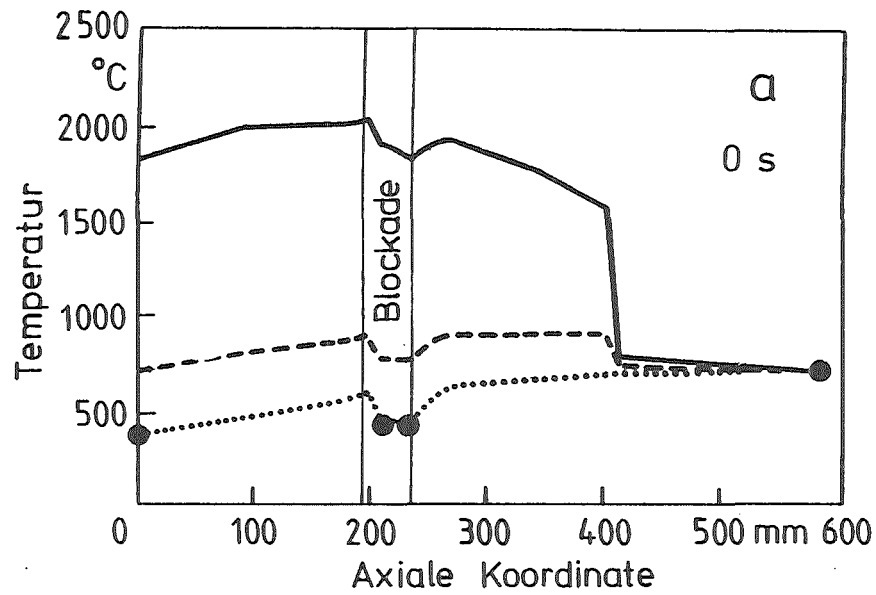


Abb. 28: Strukturradien im Experiment Mol-7c/1 und Vergleich mit URANUS-Rechnung. Schnitt durch einen inneren Stab in Höhe 170 mm (unterhalb der Blockade).

Abb. 29 zeigt den gerechneten axialen Temperaturverlauf zu vier ausgewählten Zeitpunkten der Haupttransiente Mol-7c/1. Im stationären Zustand (a) steigt die Kühlmitteltemperatur nahezu linear bis zur Blockade an. Im Bereich der Blockade sinkt die Temperatur durch die Zusatzkühlung beinahe auf Eintrittstemperatur ab, um dann hinter der Blockade wieder anzusteigen. Die Zentral-



● Experiment

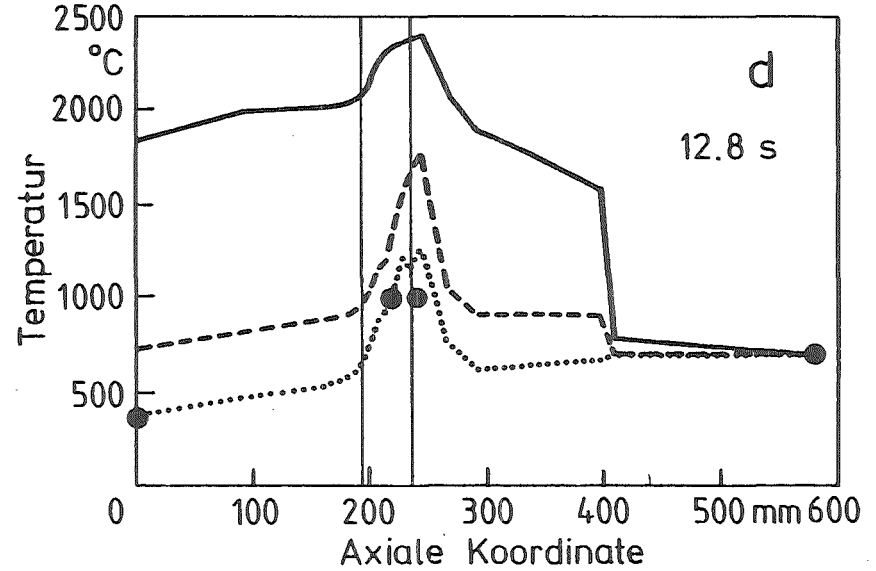
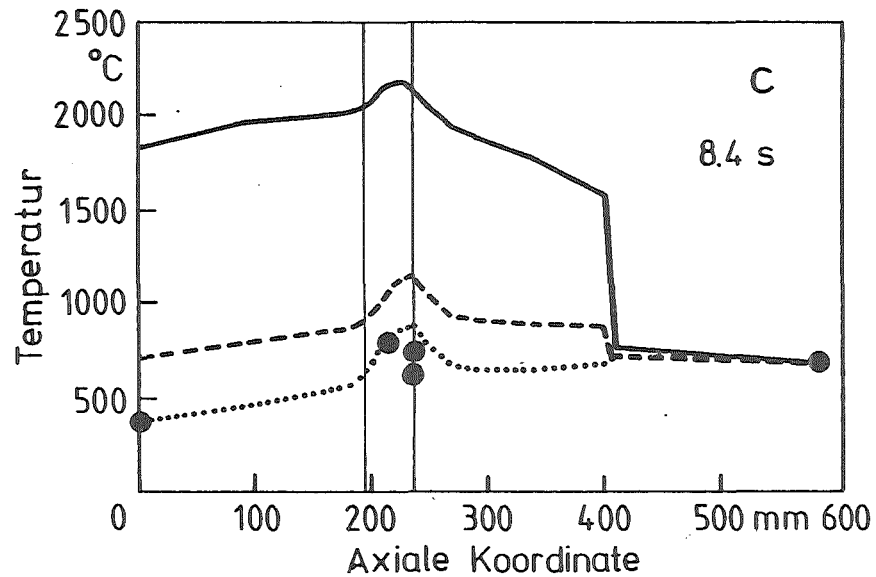


Abb. 29: Kühlmittel- (....), Brennstoffoberflächen- (---) und Zentraltemperatur (—) zu 4 ausgewählten Zeitpunkten während der Haupttransienten; Mol 7c/1, Stabtyp 1.

temperatur folgt der Leistungskurve, ist jedoch im Blockadebereich merklich beeinträchtigt. Einige Sekunden nach Schließen des Blockadeventiles (b) ergeben sich rasche Änderungen der Kühlmitteltemperatur und der Brennstoffoberflächentemperatur (behinderte Wärmeabfuhr); wegen der thermischen Trägheit wirkt sich dies jedoch nicht unmittelbar auf die Zentraltemperatur aus. Nach 8.4 Sekunden nähert sich die Kühlmitteltemperatur der Siedegrenze von 950 °C (c); Teilbild (d) zeigt, daß die Blockade fast völlig ausgetrocknet ist. Die Brennstoffoberflächentemperatur steigt schnell an, es tritt Hüllrohrversagen auf. Damit sind die Grenzen der mit den vorliegenden Modellen möglichen Beschreibungen erreicht. In der Folge wird durch Zusammenschmelzen der Blockade und der Hüllrohre die Geometrie mehr oder weniger zufällig verändert, so daß modellmäßige Beschreibungen sehr erschwert werden.

Abb. 30 und 31 zeigen den zeitlichen Verlauf der Kühlkanaltemperatur in Höhe der TE 36 und 38. Die Anstiegsgeschwindigkeit wird gut reproduziert, ebenso der etwa 2 Sekunden währende Haltepunkt bei Siedetemperatur.

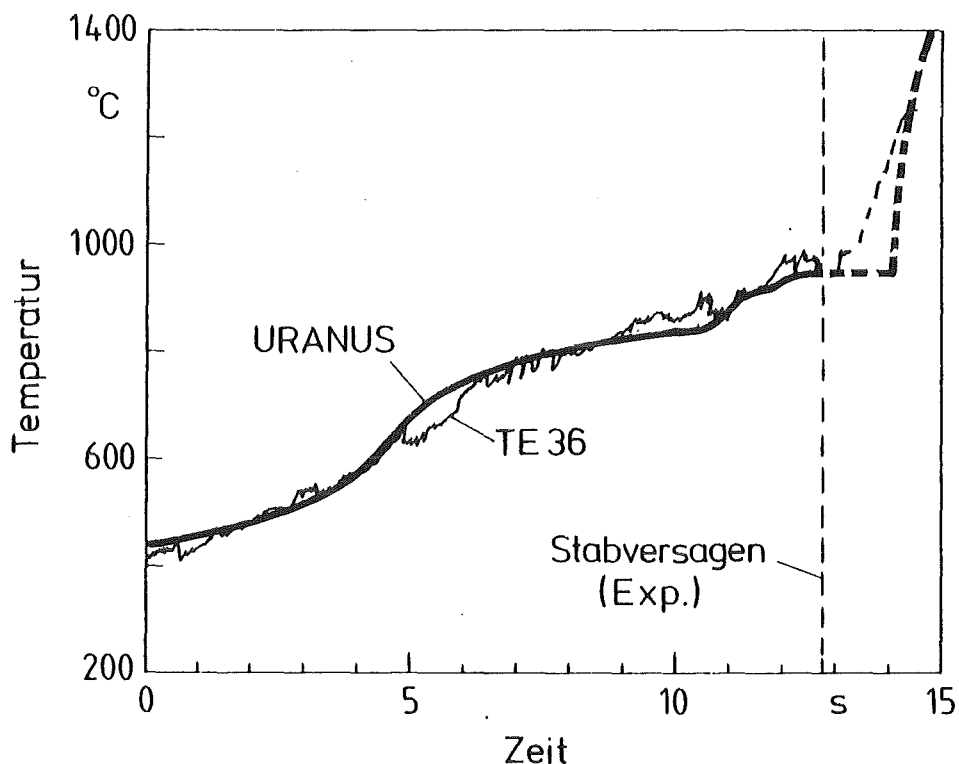


Abb. 30: Zeitlicher Verlauf der Kühlmitteltemperatur; Vergleich TE 36 mit URANUS-Rechnung für Mol 7c/1; Blockadebereich, Höhe 213 mm.

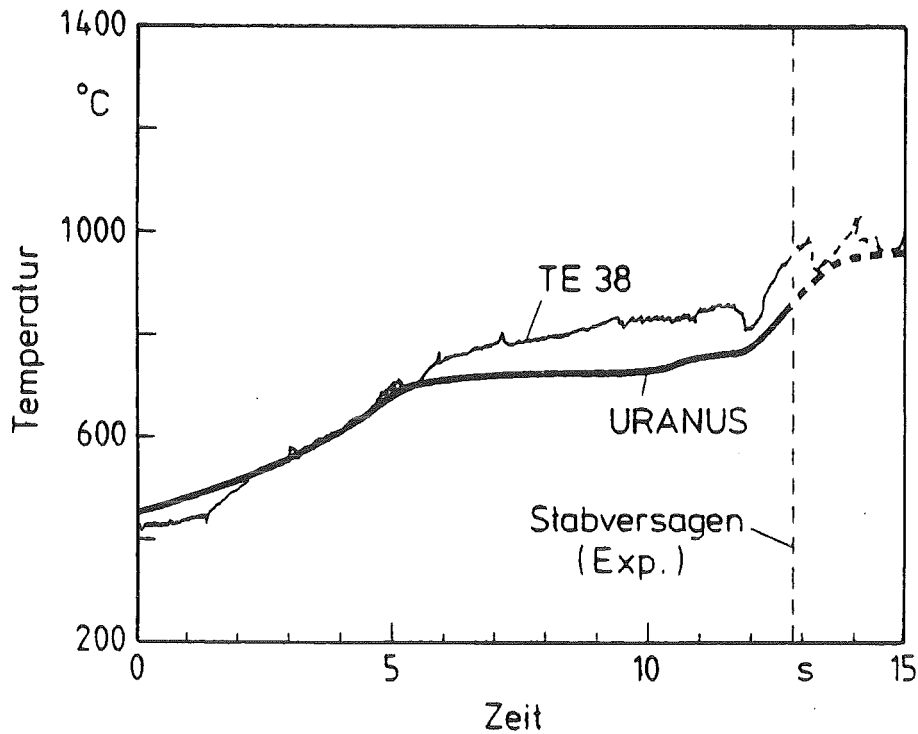


Abb. 31: Zeitlicher Verlauf der Kühlmitteltemperatur für Mol 7c/1; Vergleich TE 38 mit URANUS-Rechnung. Blockadebereich, Höhe 203 mm.

Abb. 32 zeigt einen Vergleich der gerechneten Brennstofftemperaturen mit der Zentral-Thermoelementanzeige.

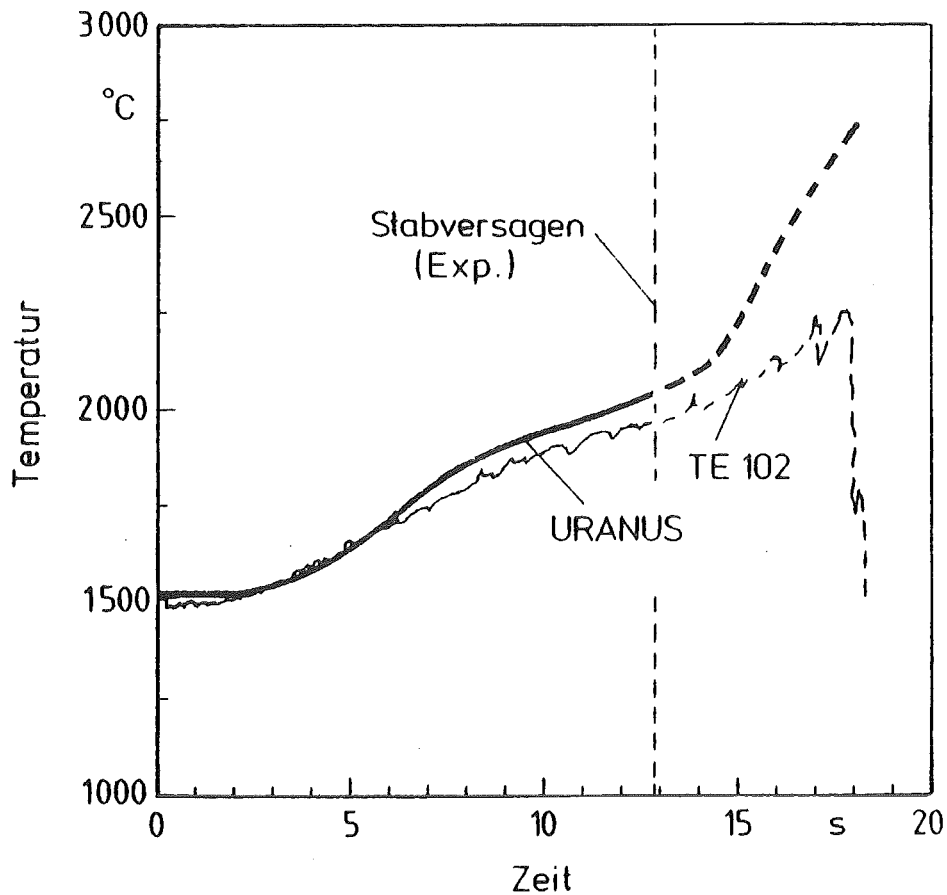


Abb. 32: Zeitlicher Verlauf der Zentraltemperatur für Mol 7c/1; Vergleich TE 102 mit URANUS-Rechnung. Stabtyp 1 mit Zentralthermoelement, Höhe 215 mm.

Beachtenswert in Abb. 29 ist, daß die maximalen Temperaturen kurz oberhalb der Blockade errechnet werden, was in Übereinstimmung mit dem experimentellen Befund steht, der die maximale Zerstörung oberhalb der Blockade ermittelt. Hier macht sich die thermische Trägheit der Blockade (Käfig und Kugeln) bemerkbar, während oberhalb der Blockade die Temperaturen sehr viel schneller ansteigen. Gut gekühlte Verhältnisse sind erst wieder ca. 40 mm oberhalb der Blockade anzutreffen (vgl. /134/ und Eichung  $\varphi_2 = 40$  mm).

Abb. 33 zeigt dies am typischen Verlauf der Siedefronten, die sich bis oberhalb der Blockade ziehen, bis aus anderen Kühlkanälen genug Kühlmittel in den Zentralbereich nachströmt und die Temperaturen absinken.

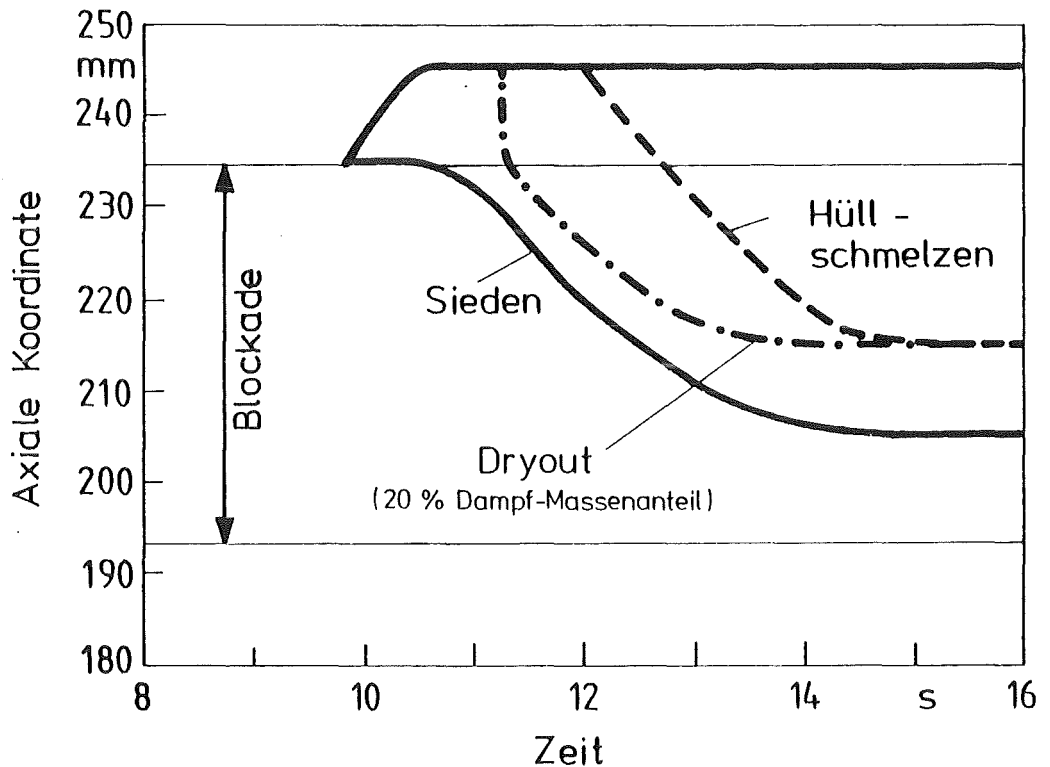


Abb. 33: Verlauf der Siedefronten im Bereich der Blockade;  
URANUS-Rechnung für Mol 7c/1.

Sehr wesentlich für die sicherheitstechnische Betrachtung von Unfall-Szenarien ist der Zeitpunkt des Hüllrohrversagens. Im vorliegenden Fall tritt unmittelbar nach Austrocknen der Blockade in weniger als einer halben Sekunde komplettes Hüllrohrschmelzen auf. Abb. 34 zeigt für beide Experimente den gerechneten Druck-

verlustzeitpunkt gegen die Druckaufnehmeranzeige mehrerer Stäbe. Unter Vernachlässigung der Gasströmungsgeschwindigkeit zeigen sich gute Übereinstimmungen in der Vorhersage des Brennstabversagens. Als Versagenkriterium wurde eine Temperatur von 100 °C unter der Schmelztemperatur angenommen.

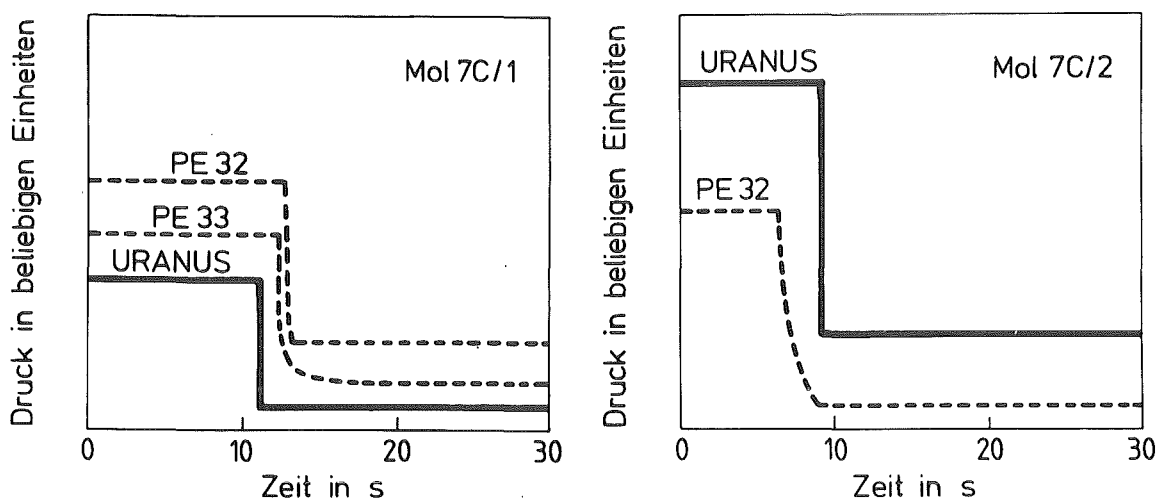


Abb. 34: Hüllrohr-Schadenszeitpunkte; Vergleich Rechnung gegen (ungeeichte) Stab-Innendruckaufnehmer.

Tabelle 8 zeigt als Übersicht den Ablauf der wichtigsten Ergebnisse für das erste Experiment. Abweichungen können in aller Regel auf das noch nicht endgültig geklärte Materialverhalten im Hochtemperaturbereich zurückgeführt werden.

Eine ausführliche Dokumentation kann der Arbeit /141/ entnommen werden.

Zeit (sec) Ereignis	Mol-7c/1 Blockade			Experiment (erste Reaktion)
	oben	Mitte	unten	
Beginn Ventil Schließen	0.	0.	0.	
Erste Thermoele- ment-Reaktion				0.
Ventil end- gültig zu	4,8	4,8	4,8	
Kühlmittel- Sieden	9,8	11,2	12,7	10.
Dryout	11,2	12,0	13,4	12,6
Hüllrohr- Schaden	11,2			12,6
Stahlschmelz- temperatur	12,0	13,4	14,8	15,0

Tabelle 8: Typische Ereignisfolge für die Haupttransiente von Mol-7c/1; URANUS-Rechnung gegen Experiment.

## 4.2 Untersuchungen am Karbidstab

Im folgenden sollen einige typische Ergebnisse vorgestellt werden, die mit der in Kapitel 3.1 entwickelten URANUS-Karbidvariante erzielt wurden. Sie geben einen Eindruck von der Leistungsfähigkeit des Systems und bestätigen im großen und ganzen die Richtigkeit aller eingebrachten Daten und Modelle. Wegen der insgesamt geringen Zahl an nachgerechneten Experimenten dürfen diese Resultate jedoch nicht als abgeschlossene Verifikation der Materialdatenvariante angesehen werden. Benchmarking-Untersuchungen, Code-Vergleiche und Detailverbesserungen einzelner Modelle stehen derzeit noch aus.

### 4.2.1 Stationäre Rechnungen am Karbidstab

Es wurden Rechnungen zu den Experimenten Mol-11 (KfK) sowie GOCAR-4 und DN1DP3 (sämtlich Euratom) durchgeführt. Die Mol-11 Experimente wurden in vier Versuchsgruppen im thermischen Fluß des BR-2-Reaktors in Mol/Belgien durchgeführt. Mol-11/K1 bestand aus einem Stab mit UC-Brennstoff von 94% th. D., Mol-11/K2 aus drei Stäben mit Mischkarbid-Brennstoff (15% Pu) von 83% th. D.. Als Hüllrohrmaterial wurde Stahl Nr. 1.4988 verwendet, die Stäbe hatten Helium-Bindung. Die erreichten Abbrände lagen zwischen 35 und 70 GWd/to bei Stablängenleistungen im Bereich 900-1300 W/cm. Eine ausführliche Beschreibung ist in /93,95,128/ gegeben.

Das Experiment GOCAR-4 wurde im thermischen Fluß des Reaktors Siloe/Grenoble durchgeführt, es wurde (U,Pu)C-Brennstoff mit 93% th. D. eingesetzt, das Hüllrohr bestand aus Niob-1% Zr. Bei einer Stabileistung von etwa 650 W/cm wurde in neun Bestrahlungszyklen ein Abbrand von 3,5% erzielt. Weitere Daten können /96,97/ entnommen werden.

Die Experimente der Serie DN1 wurden im Dounreay Fast Reactor bestrahlt. Neben (U,Pu)-Nitrid, -Karbo-Nitrid, -Karbo-Oxid-Stäben wurden drei (U,Pu)-Karbid-Stäbe DN1DP1-DP3 eingesetzt,



mit unterschiedlichen Abbrandzielen zwischen 1,5 und 6%. Die lineare Stableistung lag mit 1100-1300 W/cm relativ hoch und entsprach damit den damaligen Vorstellungen für zukünftige Reaktoren mit fortgeschrittenem Brennstoffkonzept. (Neuerdings werden etwas geringere Leistungen diskutiert.) Daten können /129; 142, 143/ entnommen werden.

Abb. 35 zeigt gerechnete Zentraltemperaturen für den ersten Zyklus des Experimentes MOL-11/K2-2 gegen die Ergebnisse von SATURN /93/, wobei der Einfluß der Brennstoff-Nachverdichtung variiert wurde. Da eine Aufweitung des Hüllrohres infolge mechanischer Wechselwirkung mit dem Brennstoff dem experimentellen Befund nach erst bei einem Abbrand von 3% Fima auftrat, ist die Annahme von schwacher Nachverdichtung durchaus begründet. Abb. 36 zeigt die am Ende der Bestrahlung gemessenen kalten Hüllrohrradien sowie die Ergebnisse von URANUS für drei ausgewählte Schnitte; die Übereinstimmung ist gut für die Annahme geringer Nachverdichtung.

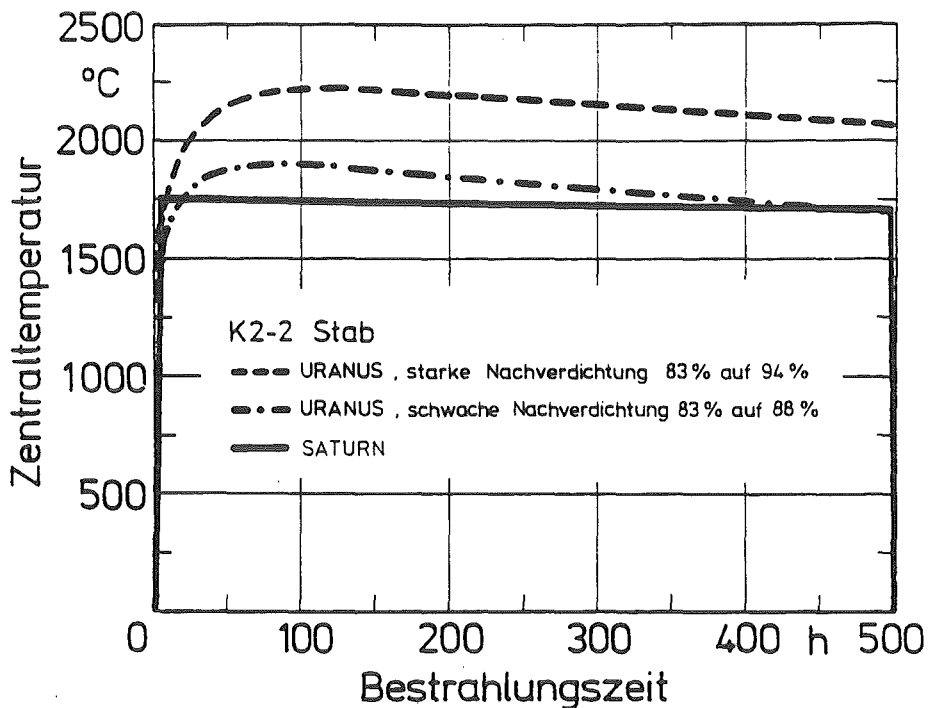


Abb. 35: Zentraltemperatur in Abhängigkeit von der Bestrahlungszeit beim Prüfling K2-2.

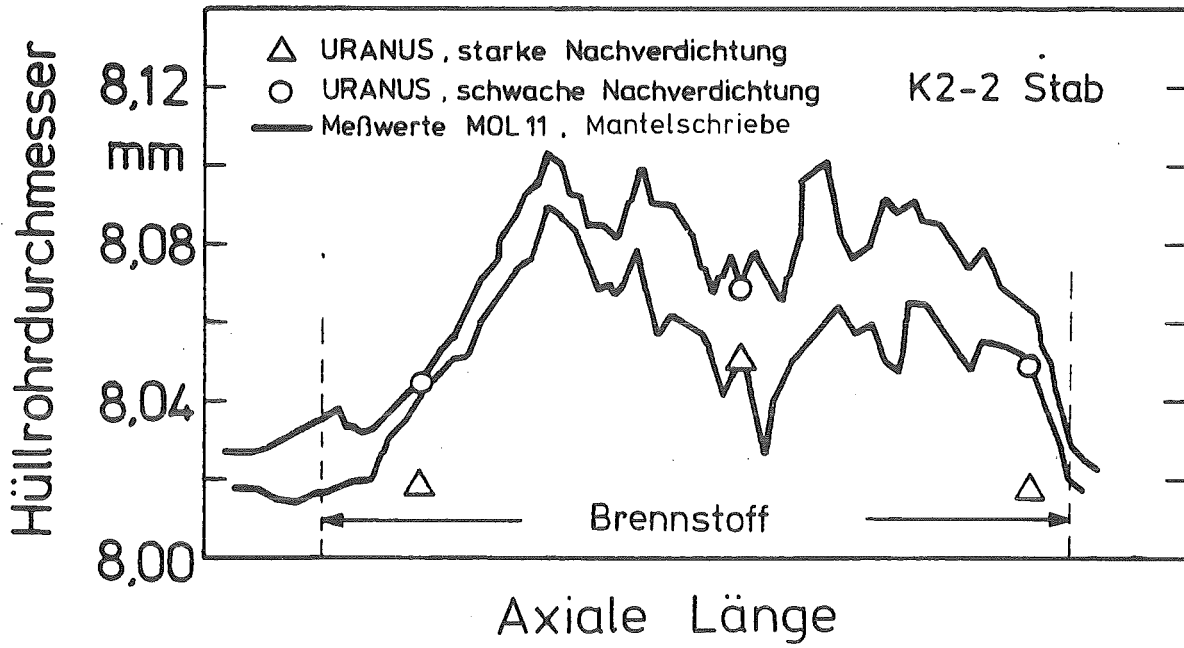


Abb. 36: Hüllrohrdurchmesser des Prüflings K2-2 über der axialen Länge.

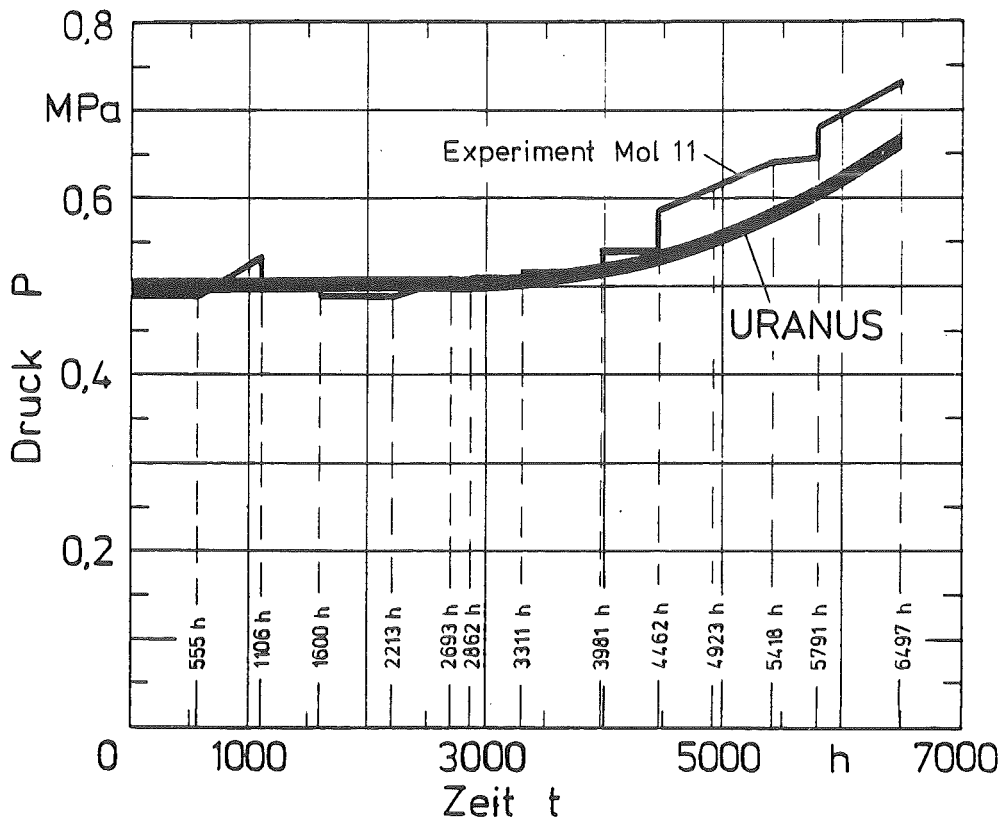


Abb. 37: Spaltgasdruckaufbau im Stab K2-2 als Funktion der Zeit.

Abb. 37 zeigt den gemessenen Spaltgasdruckaufbau des Stabes K2-2 gegen die URANUS-Rechnung; zur Unterbringung der Meßapparatur war das freie Gasvolumen etwa 100 mal größer als bei den anderen Stäben dieser Reihe. Tabelle 9 zeigt die Ergebnisse der Nachbestrahlungsuntersuchung für das im Brennstoff gebundene Spaltgas und die mit URANUS errechneten Werte für K2-2 und K1-1. Die Übereinstimmung ist gut und bestätigt das neuentwickelte Modell zum Spaltgasverhalten.

Experiment	Probe	Abbrand MWd/kg M	gebundenes Spaltgas mm <sup>3</sup> /g
K2-2	17	65,8	1078,96
	21	67,32	1062,46
	Rechn.	67,5	1129,0 (1172,0)*
K1-1	14	35,84	678,85
	Rechn.	32,0	507,0

\* Wert in Klammern für Rechnung mit schwachem Nachsintern.

Tabelle 9: Im Brennstoff gebundenes Spaltgas.  
Vergleich Rechnung/Experiment.

Für das Experiment GOCAR-4 wurde eine Wärmeabfuhr mit regelbarem Wärmewiderstand verwendet (Veränderung der Gaszusammensetzung im "jacket" außerhalb des Stabes), so daß über eine Beeinflussung der Hülloberflächentemperatur die Zentraltemperatur nahezu konstant auf 1080°C gehalten werden konnte. Die Zentraltemperatur wurde mittels Thermoelement im Zentralkanal kontinuierlich erfaßt. Abb. 38 zeigt die errechneten Werte für Zentraltemperatur, Brennstoffoberflächentemperatur, innere

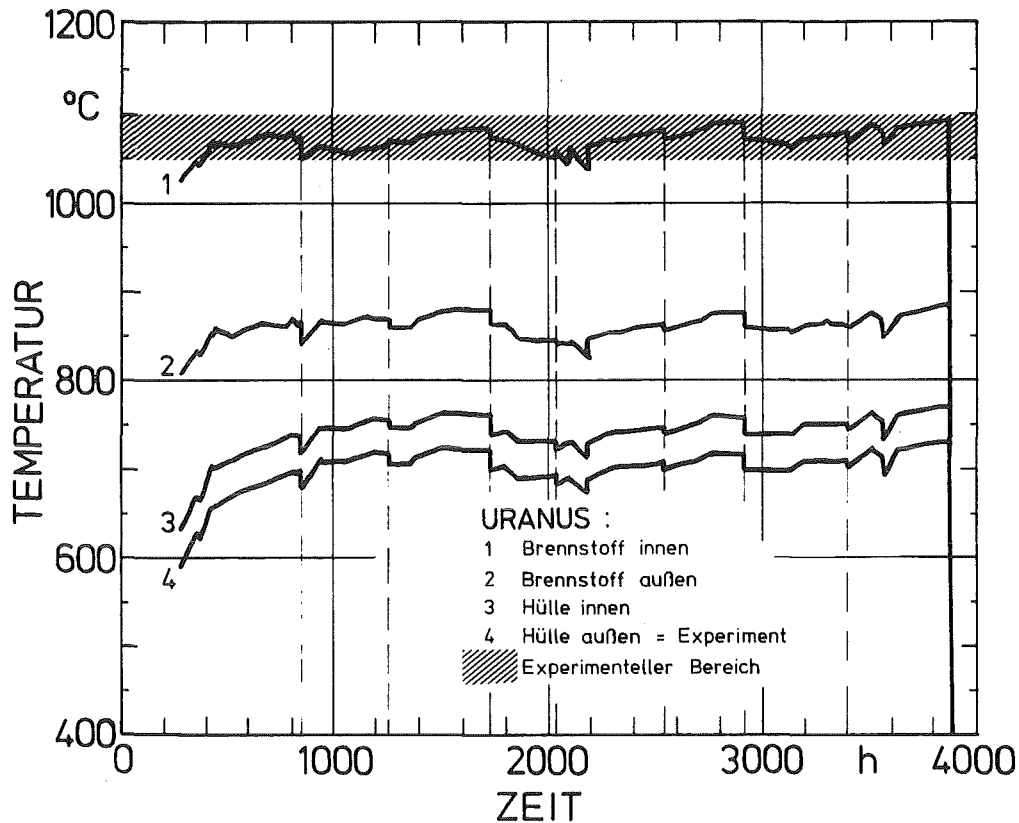


Abb. 38: Temperaturverteilung über der Zeit bei konstanter Gas-  
konzentration im Spalt; URANUS-Rechnung gegen Experiment.

und äußere Hüllentemperatur unter Berücksichtigung des Zyklusbetriebes; zum Vergleich ist der Schwankungsbereich der Zentraltemperatur des Experimentes dargestellt.

Abb. 39 zeigt die errechnete Wärmedurchgangszahl im Spalt gegen den Bereich, in dem die Wärmedurchgangszahl im Experiment etwa gelegen haben muß (rückgerechnet aus Stablängenleistung, Zentral- und Hülloberflächentemperatur und den entsprechenden Wärmeleitfähigkeit). Es ist ein deutlicher Anstieg bis zum Eintreten des radialen Kontaktes zu erkennen, danach verbessert sich der Wärmedurchgang im Experiment noch etwas (u.U. durch Wechselwirkungseffekte), was in der Rechnung nicht berücksichtigt wurde. Wegen der geringen Zentraltemperatur und dem hochdichten Brennstoff wurde hier ohne Spaltgasfreisetzung gerechnet.

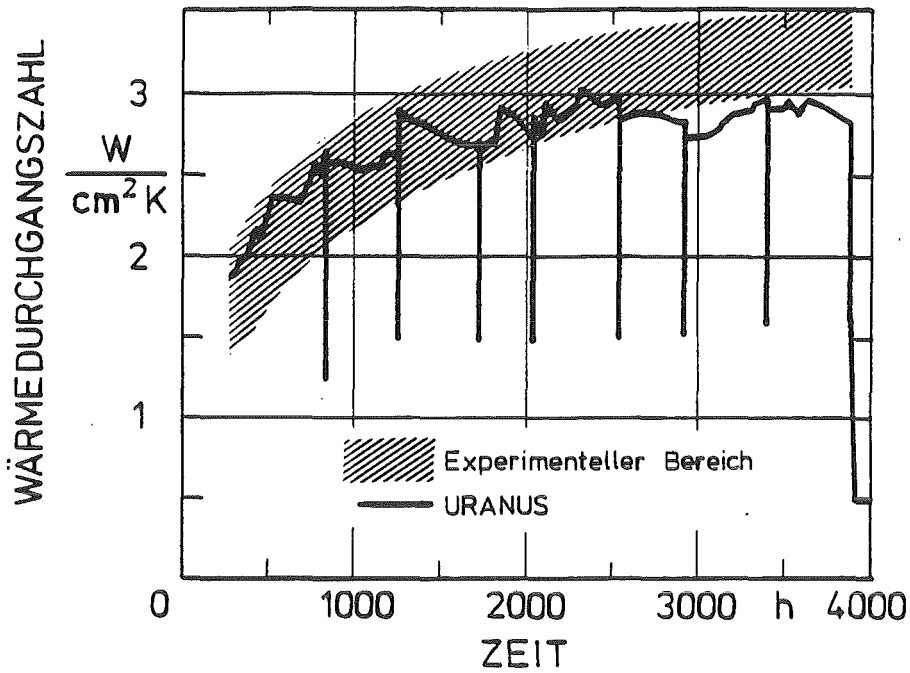


Abb. 39: Wärmedurchgangszahl  $h_{gap}$  bei konstanter Gaskonzentration im Spalt für GOCAR-4. URANUS-Rechnung gegen Experiment.

Abb. 40 zeigt die Ergebnisse, die mit dem beschriebenen Schwell-Modell erzielt wurden. Ab Eintreten des radialen Kontaktes nimmt die Schwellrate deutlich ab, im Beispiel wurde das Gasblasenschwellen sogar völlig unterdrückt, um eine untere Grenze für das behinderte Schwellen sicher abschätzen zu können.

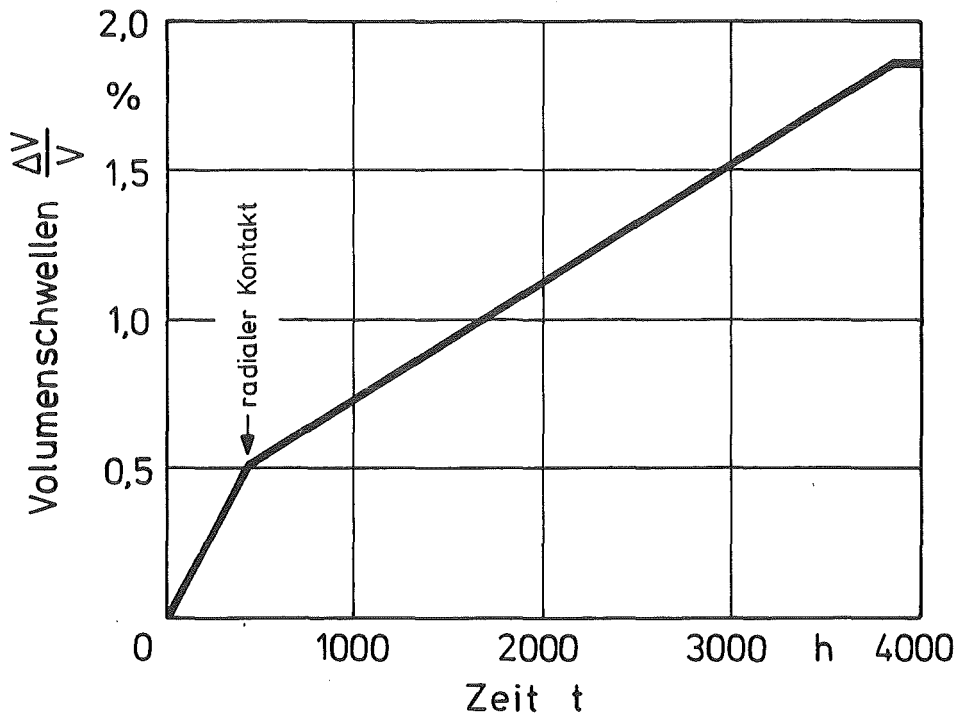


Abb. 40: Volumenschwellen im Brennstoff über der Zeit (Volumen-%); URANUS-Rechnung für GOCAR-4.

Abschließend seien einige Ergebnisse von Rechnungen zu den Experimenten DN1DP diskutiert, für die das Umstrukturierungsmodell nach Blank /61,144/ verwendet wurde. Entsprechend der PIE-Schnitte wurden für jeden Stab 5 Schnitte ausgewählt, die die Verhältnisse am Kühlkanalanfang, im höchstbelasteten Punkt, am Kühlmittelaustritt sowie an zwei Punkten mittlerer Belastung widerspiegeln. Die Bestrahlungszyklen wurden zu je einem durchlaufenden Vollastzyklus zusammengefaßt. Wegen gewisser Schwierigkeiten bei der Bestimmung der Wärmeleitzahl  $\lambda$  im Brennstoff und des Einflusses der Spaltgasfreisetzung auf die Wärmeübergangszahl im Spalt wurden zu jedem Experiment mehrere Rechnungen durchgeführt, die in einer oberen bzw. unteren Abschätzung der errechneten Temperaturen resultieren.

Durch thermische und rißbedingte Verformungen geht der Spalt beim Anfahren von 100 auf 50  $\mu\text{m}$  zu und schließt sich in der Folge durch Brennstoffschwellen. Die Starttemperaturen liegen bei 1700-1900 $^{\circ}\text{C}$  zentral bzw. bei 1000-1200 $^{\circ}\text{C}$  am Brennstoffrand. Während der ersten 500-1000 Bestrahlungsstunden findet der größte Teil der schwellbedingten Temperaturabsenkungen statt, nach Eintreten des radialen Kontaktes liegen die Temperaturen bei 1300-1600 $^{\circ}\text{C}$ . Dieses Niveau bleibt bis zum Ende der Bestrahlung erhalten. Je nach axialer Leistungsverteilung tritt der radiale Kontakt früher oder später ein. Dadurch treten teilweise in niederbelasteten Schnitten (besonders bei hoher Kühlmitteltemperatur) höhere Temperaturen auf als im hochbelasteten Schnitt. Solche Effekte sind jedoch temporär.

Abb. 41 zeigt am Beispiel DP3 den zeitlichen Verlauf der Zentral- und Randtemperaturen. Die Breite der Felder resultiert aus der axialen Leistungsgeschichte und der zuvor genannten Variation der Parameter, im wesentlichen der unterschiedlichen  $\lambda$ -Werte. Innerhalb des Bereiches ist deshalb das Temperaturprofil mit recht hoher Wahrscheinlichkeit zu finden.

Das temperatur/abbrandabhängige Schwellmodell liefert im Zentrum des Stabes deutlich höhere Schwellraten als am kalten Rand, gleichzeitig wird im Zentrum eine Zunahme der Porosität

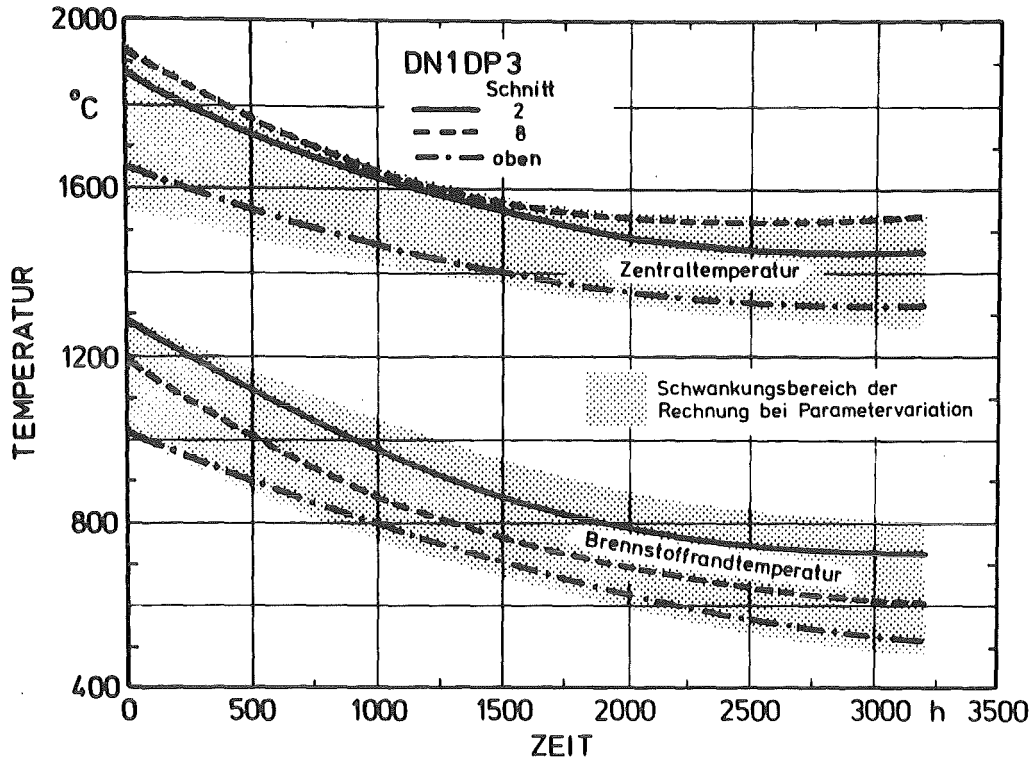


Abb. 41: Zentraltemperatur und Brennstoffrandtemperatur für DN1DP3; URANUS-Rechnung.

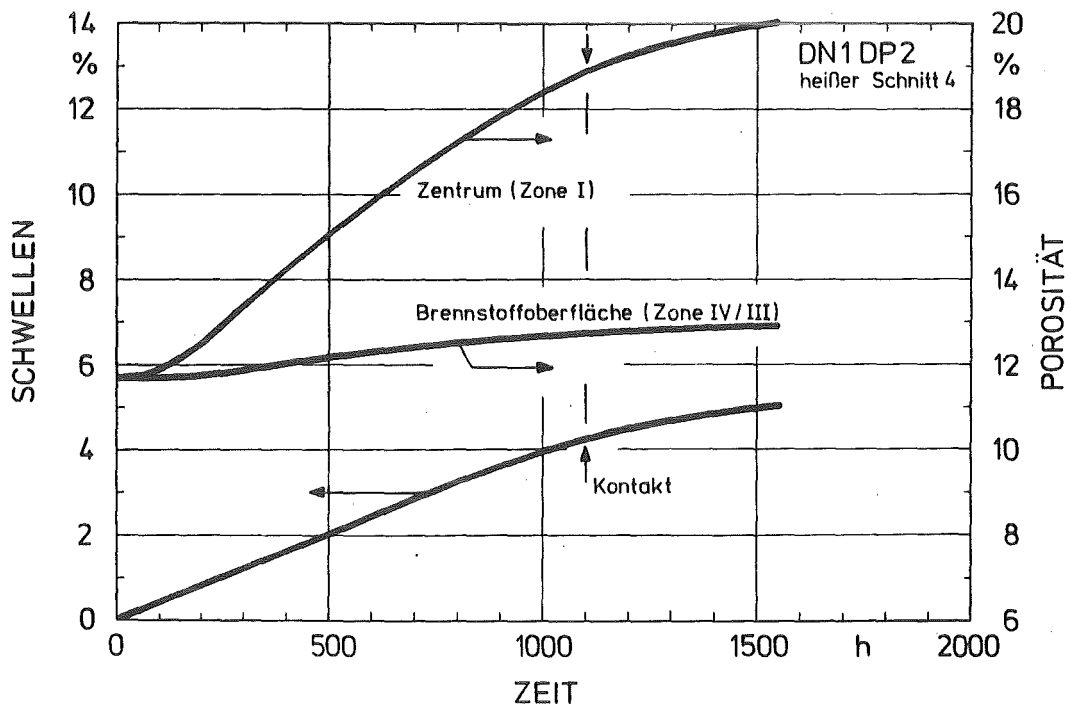


Abb. 42: Schwellen und Porosität für Experiment DN1DP2; URANUS-Rechnung.

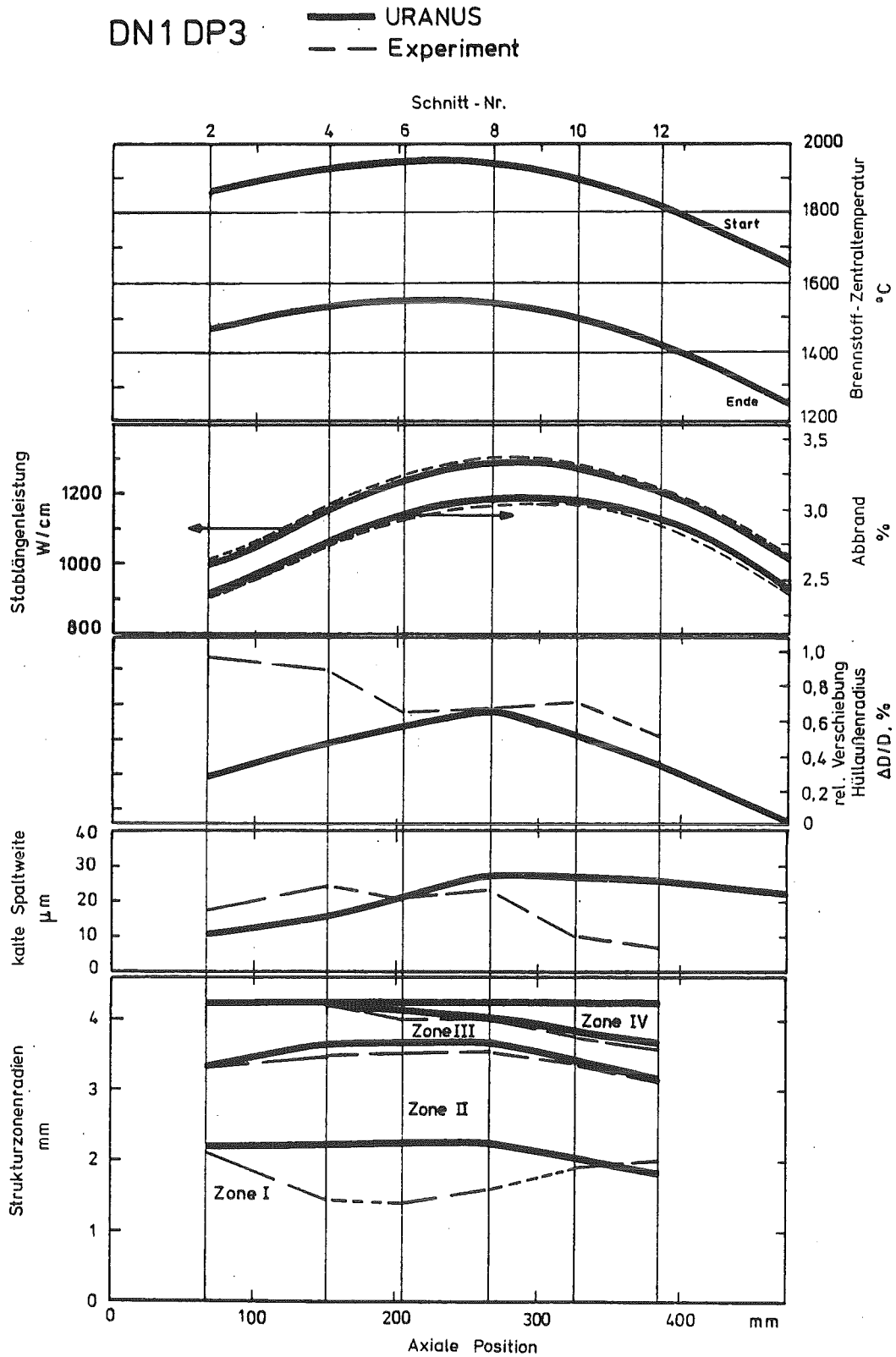


Abb.43: Zentraltemperaturen, Leistung, Abbrand, Hüllrohrverformung, kalter Spalt und Strukturzonen; Vergleich URANUS-Rechnung mit Experiment DN1DP3.



ermittelt, die mit dem Gasblasenschwellen einhergeht. Abb. 42 zeigt den zeitlichen Verlauf der Porosität innen und außen, sowie das gemittelte Volumenschwellen für den höchstbelasteten Schnitt von DP2. Der Einfluß des radialen Kontaktes ist an der Reduzierung der Steigungen gut zu erkennen. Abb. 43 zeigt Ergebnisse der Rechnungen im Vergleich mit experimentellen Daten aus der Nachbestrahlungsuntersuchung. Abbrand, Hüllrohrwandstärke und die Bestimmung der Strukturzonen können gut reproduziert werden, während die bleibende Hüllrohrverformung und damit der kalte Spalt etwas abweichen. Die Rechnung zeigt eine gewisse Korrelation zwischen Leistungsverteilung, Temperatur und Hüllrohrdeformation, was sich im Experiment nicht so deutlich zeigt. Hier spielen vor allem Fragen der Wechselwirkung Brennstoff-Hülle eine Rolle, die naturgemäß schwierig zu behandeln sind und auch noch nicht endgültig verstanden sind. Die Bestimmung der vier Strukturzonen dagegen ist im Rahmen der üblichen Abweichungen im Hochtemperaturbereich als zufriedenstellend zu bewerten.

#### 4.2.2 Transiente Rechnungen am Karbidstab

Die Tauglichkeit der entwickelten Modelle für Störfallexperimente am Karbidstab soll anhand einer Nachrechnung eines Experimentes im TREAT-Reaktor gezeigt werden, bei dem frischer Brennstoff eingesetzt wurde, so daß auf die Verwendung der quasi-stationären Modelle zum Schwellen und zur Spaltgasfreisetzung verzichtet werden kann. Transiente Experimente mit fortgeschrittenen Brennstoffen werden fast ausschließlich in den USA durchgeführt und stehen wegen sehr strengem Schutz der Modelltheorie praktisch nicht zur Verfügung. Hier stellen die Experimente der HC- und SC-Serie im Graphit-moderierten TREAT-Reaktor zumindest teilweise eine Ausnahme dar. Sie wurden zur Vorbereitung für den für etwa 1984 geplanten Einsatz von 10 bis 15 Karbid-Brennelementen im Schnellen FFTF-Reaktor durchgeführt, wobei der Nachweis ausreichend sicheren Verhaltens der Elemente beim Auslegungsstörfall im voraus erbracht

sein muß. Die Ziele der Experimentserie sind in /145,146/ beschrieben; es werden unbestrahlte sowie bei hohen Leistungen vorbestrahlte Stäbe mit Helium- oder Natriumbindung eingesetzt und Transienten im Bereich 50  $\phi$ /s bis 3  $\phi$ /s gefahren.

Die eigenen Untersuchungen orientieren sich an dem in /146/ beschriebenen Experiment SC1-A. Dabei handelt es sich um einen Na-gebundenen Mischkarbid-Stab hoher Ausgangsdichte mit einem Hüllrohr aus kaltverformtem Stahl AISI 316. Nach einer kurzen Vorbestrahlung mit 90 W/mm Stablängenleistung zur Einstellung des typischen Temperaturprofils folgt eine mittelschnelle Leistungstransiente von 50  $\phi$ /s auf 384 W/mm. Unmittelbar nach Erreichen von partiellem Brennstoffschmelzen wird das Experiment bei einer Zentraltemperatur von 2480°C abgebrochen. Die mittlere Hülltemperatur beträgt dabei 990°C. Im mittleren Teil der Brennstoffsäule kommt es zum teilweisen Schmelzen von Tabletten (Schmelzanteil 20 %). 0.8 Sekunden vor Ende des Experimentes tritt zudem partielles Verdampfen der Natriumbindung auf (LOB, Loss of Bond). Es wird eine Energie von 1850 J/g injiziert.

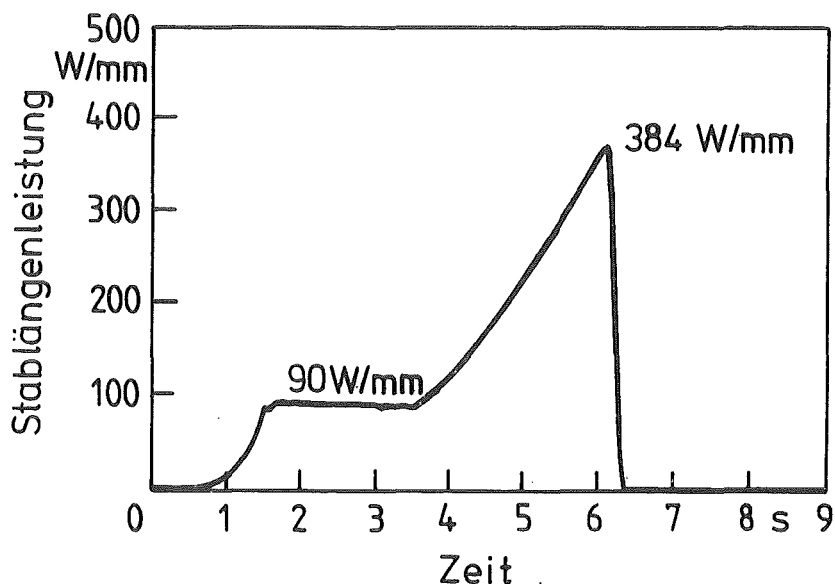


Abb. 44: Leistungsgeschichte TOP SC-1A, aus /146/.

Abb. 44 zeigt die Leistungsgeschichte des Experimentes, die für die Rechnung übernommen wurde; es wurde eine kosinusförmige axiale Leistungsverteilung angenommen. Da keine Angaben zur Thermohydraulik vorliegen, wurde die Kühlmitteltemperatur aus der mittleren Hüllentemperatur berechnet. Für den Wärmeübergang im Spalt gilt bei intaktem Bonding nach /88/ ein Wert von  $16.5 \text{ W/cm}^2\text{K}$  bei BOL, für verdampftes Bonding können nahezu adiabate Zustände ( $0.02 \text{ W/cm}^2\text{K}$ ) angesetzt werden /103/, was auch den MAPLIB-Daten /31/ für flüssiges bzw. dampfförmiges Natrium entspricht.

Mit diesen Daten durchgeführte Rechnungen führen zu guter Übereinstimmung mit dem experimentellen Befund. Abb. 45 zeigt den Verlauf der Zentraltemperatur über der Zeit und die Schmelzfraction, Abb. 46 den axialen Verlauf der Schmelzfront zu unterschiedlichen Zeitpunkten.

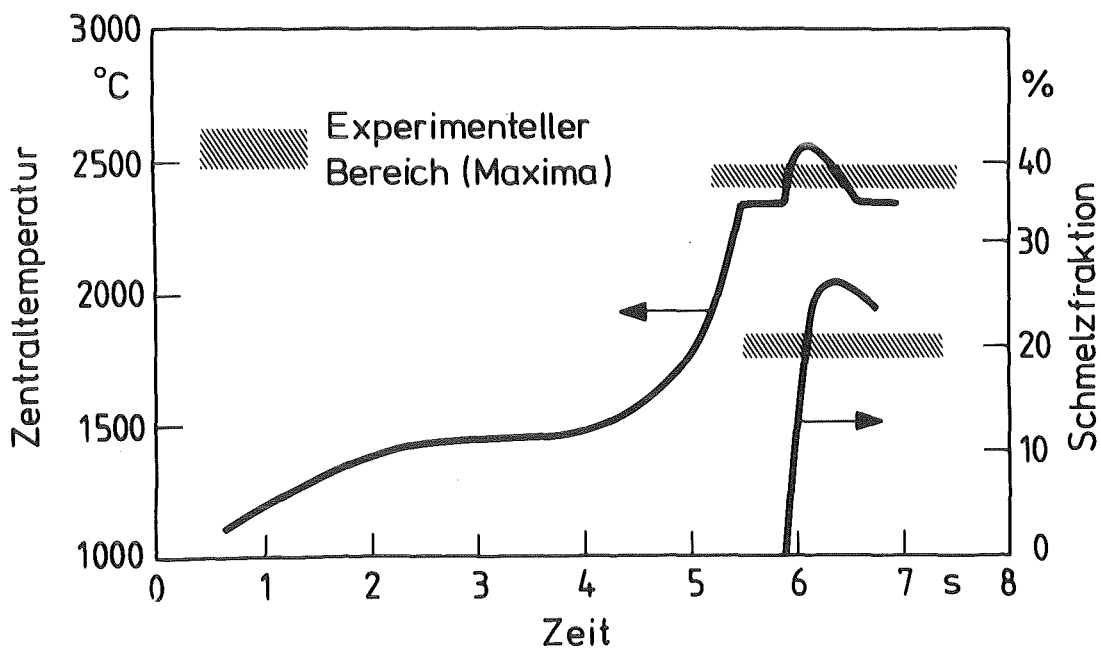


Abb. 45: Zentraltemperaturverlauf und Schmelzfraction über der Zeit für SC-1A. URANUS-Rechnung.

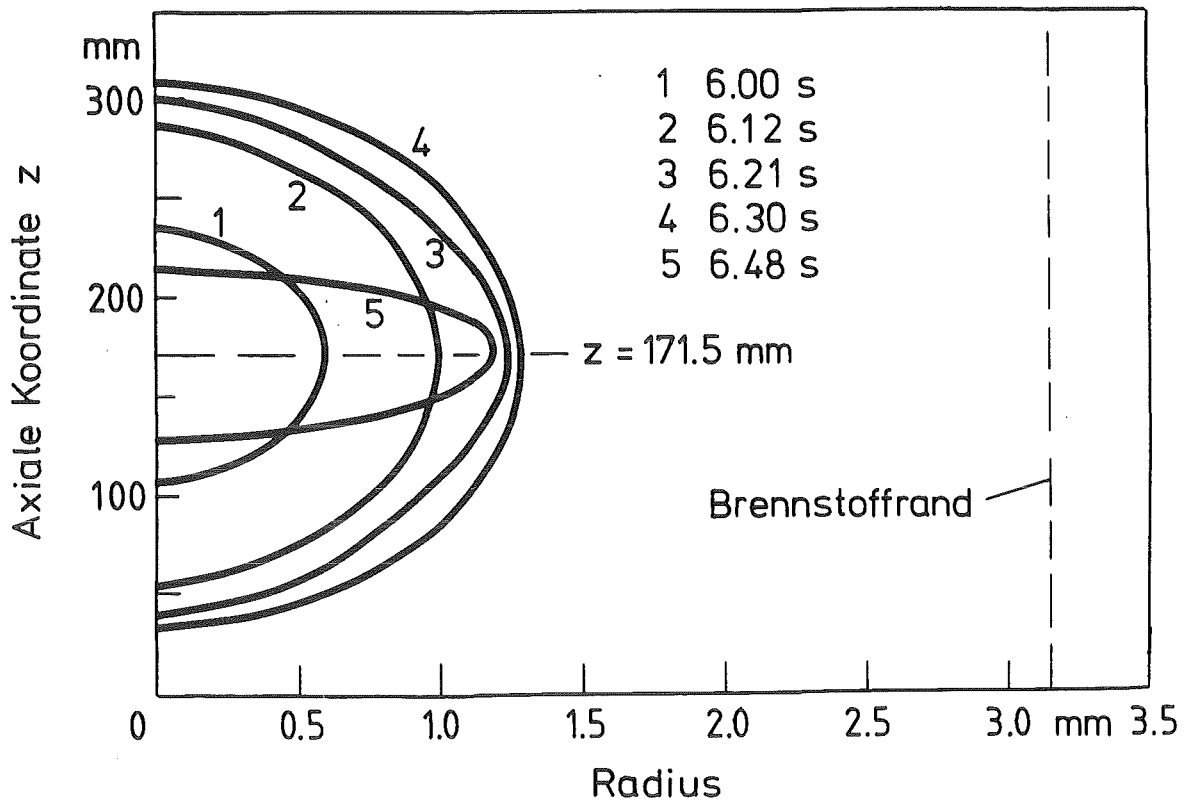


Abb. 46: Axialer Verlauf der Schmelzfront zu ausgewählten Zeitpunkten für SC-1A. URANUS-Rechnung.

Die durch die thermische Trägheit des Brennstoffes sich einstellenden Verzögerungen gegenüber der Leistungskurve sind gut zu erkennen. Die Schmelzfraktion und die maximale Zentraltemperatur werden in guter Übereinstimmung mit dem Experiment berechnet.

Die errechnete mittlere erzeugte Energie des Stabes ergibt sich aus dem vorgegebenen Leistungsverlauf zu 765 J/mm (= 1843 J/g), was den Angaben zum Versuchsablauf gut entspricht. Für den höchstbelasteten Schnitt liefert die Rechnung als zusätzliches Resultat eine maximale Injektion von 855 J/mm.

#### 4.3 Gegenüberstellung des Oxid- und Karbidstab-Konzeptes im Rahmen von Störfalltransienten

Die Vorteile des fortgeschrittenen Brennstoffkonzeptes mit (U,Pu)C wurden bereits diskutiert. In diesem Kapitel soll untersucht werden, inwieweit gegenüber dem Oxidstab unterschiedliches Verhalten bei schnellen Leistungsexkursions-Störfällen zu erwarten ist. Dazu werden vergleichende Rechnungen unter Verwendung eines Modell-Pulses angestellt, der sich an in Testreaktoren durchgeführten Oxidstab-Leistungspulsen orientiert (vgl. z.B. /147/).

Aus dem unterschiedlichen Konzept des Oxid- und Karbidstabes, insbesondere wegen der unterschiedlichen Leistungsdichte und der für den Karbidstab alternativ vorgesehenen Natriumbindung, ergibt sich von vornherein ein anderer Störfallverlauf. Mync et al. /84/ diskutieren dies für einen Kühlmittelverluststörfall (LOF). Ihre Rechnungen zeigen, daß sich während des Kühlmittelverlustes der positive Einfluß auf die Reaktivität infolge der Abnahme der Natrium-Dichte und der negative Doppler-Effekt sehr lange gegenseitig kompensieren und so die Reaktorleistung während des Kühlmittelverlustes längere Zeit konstant bleibt (vgl. Abb.47). Mit dem völligen Ausbleiben der Kühlung setzt jedoch schnell der Verlust der Natrium-Bindung ein (Loss of Bond). Dadurch wird der Wärmestrom in die Hülle und in den Kühlkanal so stark reduziert, daß der Kühlkanal kurzzeitig wieder flüssiges Kühlmittel führt. Durch das infolge des LOB aufgetretene Brennstoffschmelzen schließt sich nun allerdings der radiale Spalt, die Wärmeabfuhr wird wieder möglich, es kommt zu einem zweiten schnellen Austrocknen des Kühlkanales und einer damit verbundenen Leistungsexkursion. Das Verhalten ist also signifikant anders als beim Oxidstab-LOF.

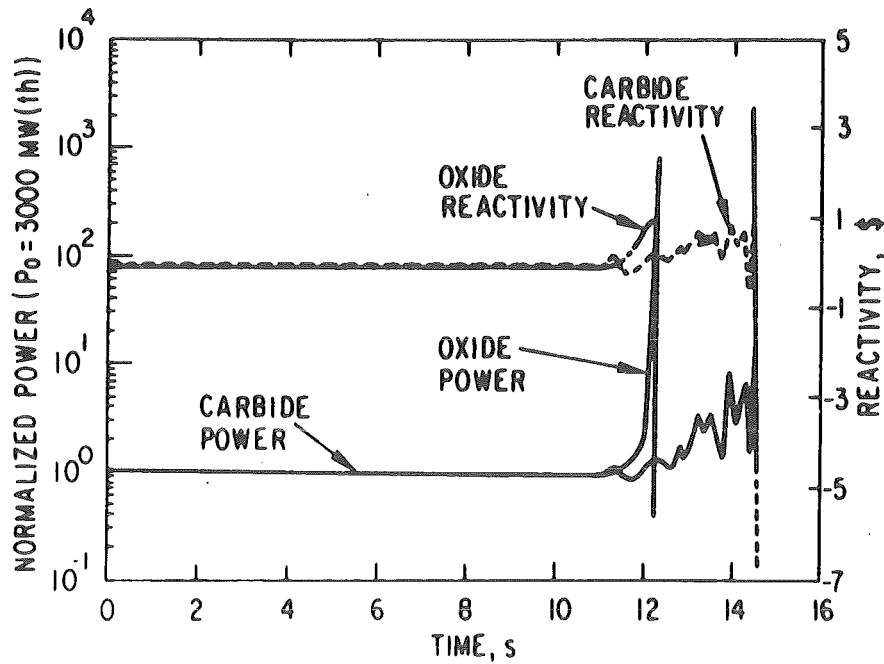


Abb. 47: Leistungs- und Reaktivitätsgeschichte für Oxid- und Karbidstäbe während eines Kühlmittelverlustes (aus /84/).

Um vergleichbare Aussagen treffen zu können, wird deshalb im folgenden nur eine Leistungsexkursion analysiert (TOP). Bei gleichen Randbedingungen werden Modellpulse mit 0.277 und 0.554 kJ/mm im höchstbelasteten Punkt PPP (Peak Power Position) bei Pulsbreiten von 130 und 260 ms untersucht. Die maximale Leistungsüberhöhung  $q'/q_0'$  betrage 75 und 150, es werden stationäre Stablängenleistungen von 50 und 100 W/mm bei PPP diskutiert; an den Stabenden beträgt die Leistung 38 % der maximalen. Es wird eine typische Schnellbrütergeometrie mit 3.8 mm Stabradius angenommen; die Kühlung erfolgt durch Natrium mit 400°C Eintrittstemperatur. Für den Oxidstab und den Karbidstab mit 50 W/mm wurde Heliumbindung, für den Karbidstab 100 W/mm mit Puls 0.277 kJ/mm ebenfalls Heliumbindung, für den Karbidstab 100 W/mm mit Puls 0.554 kJ/mm Natriumbindung angenommen. Abb. 48 zeigt die verwendeten Modell-Pulse, und Tabelle 10 gibt eine Übersicht über die durchgeführten Rechnungen.

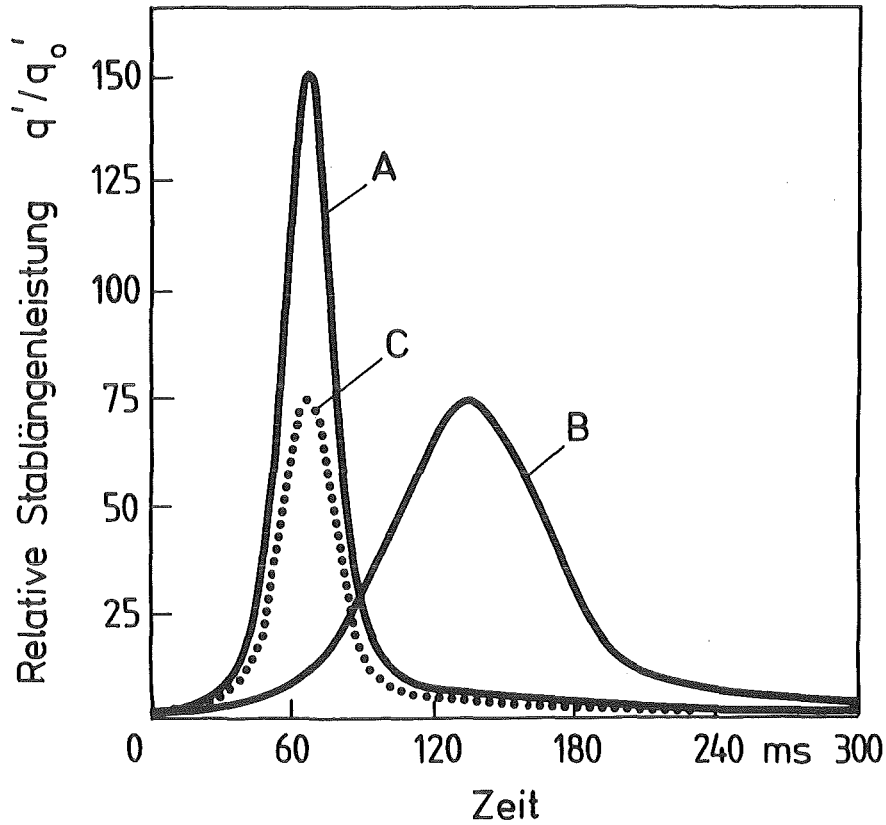


Abb. 48: Modellpulse; relative Stablängenleistung über der Zeit.

Abkürzung	Brennst.	Bin- dung	Puls- form	stat. Leistung W/mm	max. Leistung W/mm	injizierte Energie kJ/mm	
1	O-50-He-A	(U,Pu)O <sub>2</sub>	He	A	50	7500	0.277
2	C-50-He-A	(U,Pu)C	He	A	50	7500	0.277
3	C-100-HeC	(U,Pu)C	He	C	100	7500	0.277
4	C-100-Na-A	(U,Pu)O <sub>2</sub>	Na	A	100	15000	0.554
5	O-50-He-B	(U,Pu)O <sub>2</sub>	He	B	50	3750	0.277
6	C-50-He-B	(U,Pu)C	He	B	50	3750	0.277
7	C-100-Na-B	(U,Pu)C	Na	B	100	7500	0.554

Tabelle 10: Zuordnung der Modellpulse zu den durchgeführten Rechnungen.

Bedingt durch die bessere Wärmeleitung in Karbid und durch die niedrigere Wärmekapazität ist die Zeitkonstante gegenüber den Oxiden etwa um den Faktor 7 niedriger. Es ist also zu erwarten, daß der Wärmestrom ins Kühlmittel höher sein wird und sich hieraus Unterschiede im Ablauf der Transiente ergeben. Dies wird durch die Rechnungen bestätigt. Abb. 49 und 51 zeigen für die Pulse "A" und "C" die zeitlichen Verläufe der Zentraltemperaturen und der Schmelzfraktionen im höchstbelasteten Schnitt, Abb. 50 und 52 für den Puls "B". Ein Vergleich der Fälle mit 0.277 kJ/mm injizierter Energie zeigt, daß für den Karbidstab die Schmelztemperatur erst nach Überschreiten der Peak-Leistung erreicht wird. Wegen der flacheren radialen Temperaturprofile schmilzt allerdings schnell ein größerer Anteil des Brennstoffes an, d.h. die Solidus-Front breitet sich rasch aus. Wegen der schnelleren Wärmeableitung ins Kühlmittel reicht die verbleibende Energie beim 50 W/mm-Karbidstab nicht zur Verflüssigung des gesamten Brennstoffes aus. Während beim Oxidstab nach 120 ms der Brennstoff bis zum halben Radius flüssig ist, wird dieser Wert für Karbid erst nach 180 ms erreicht (Puls "A").

Für den Puls "B" ist für den Oxidstab nach 400 ms die Liquidus-Front bis zum kalten Radius gewandert, für den Karbidstab wird dieser Wert nie erreicht. Insbesondere für die "langsamere" Transiente "B" zeigt sich hier eine Überlegenheit des Karbidbrennstoffes, wie man im direkten Vergleich der Abb. 51 und 52 sieht.

Berücksichtigt man, daß für zukünftige Reaktoren mit Karbid-Brennstoff höhere Stablängenleistungen geplant sind, so ergeben sich andere Ergebnisse. Für eine Stablängenleistung von 100 W/mm liegen bei dem Karbidstab mit dem 0.277 kJ/mm-Leistungspuls "C" die Brennstofftemperaturen zwar weiterhin unter denen des Oxidstabes, wegen des niedrigeren Schmelzpunktes und der geringeren Umwandlungswärme ist die Schmelzfraktion nun



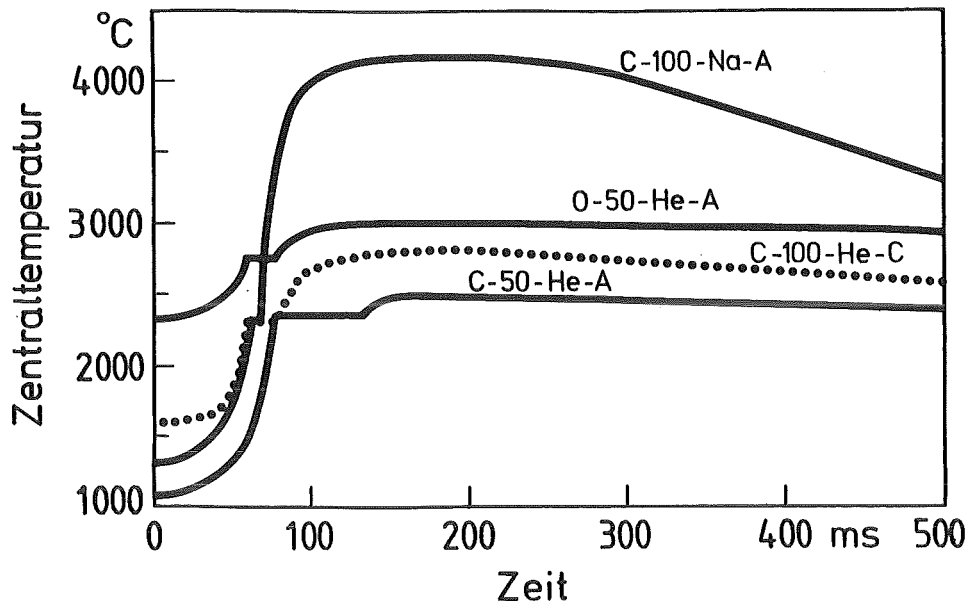


Abb. 49: Zentraltemperaturverlauf für Modell-Puls "A" und "C", Vergleich Oxid/Karbid.

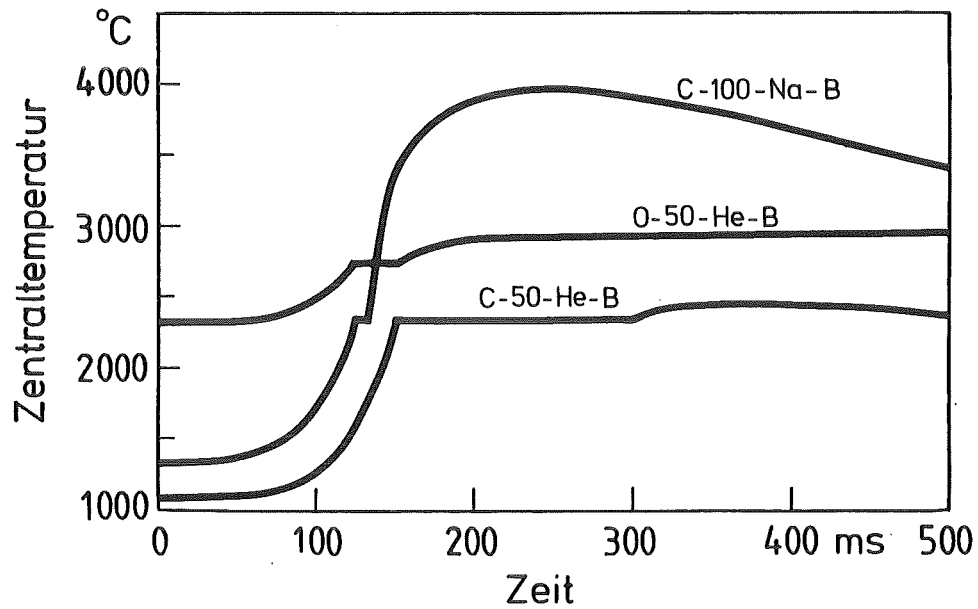


Abb. 50: Zentraltemperaturverlauf für Modell-Puls "B", Vergleich Oxid/Karbid.

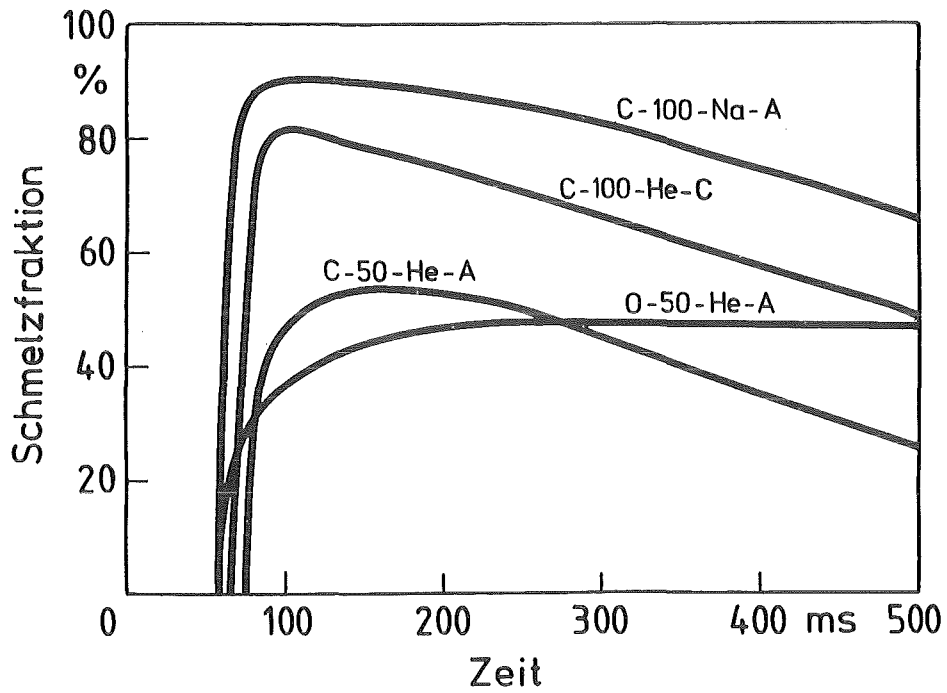


Abb. 51: Schmelzfraction für Leistungspuls "A" und "C".

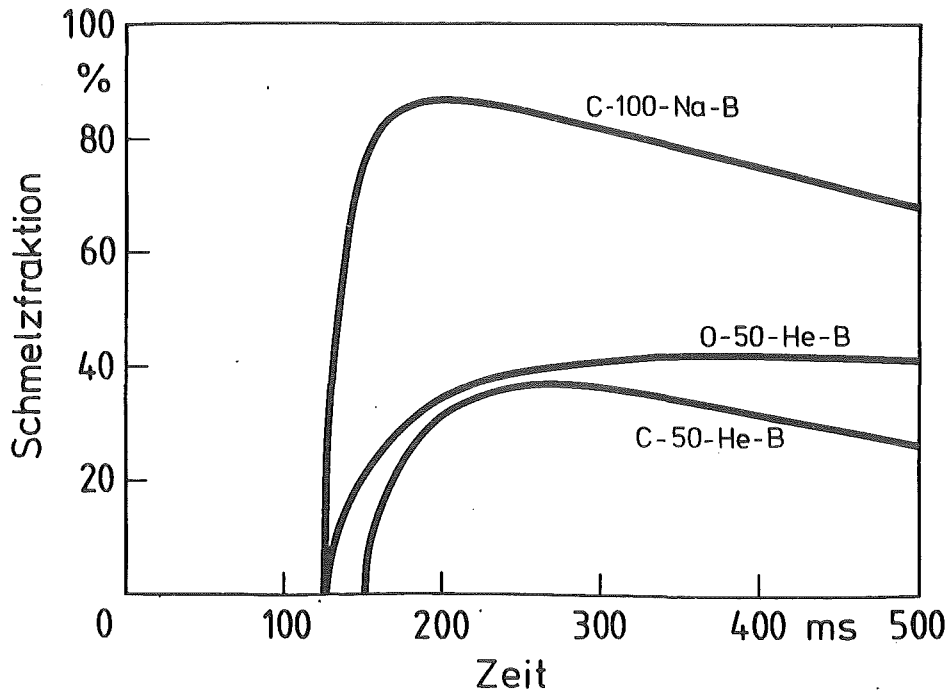


Abb. 52: Schmelzfraction für Leistungspuls "B".

jedoch höher als beim Oxidstab. Schon nach 83 ms ist die Liquidus-Front bis zum kalten Radius gewandert. Der hohe Wärmestrom in die Hülle führt dort zu Temperaturen oberhalb  $1000^{\circ}\text{C}$ , es kann Kühlmittelsieden auftreten.

Die Kombination eines 100 W/mm-Stabes mit Na-Bindung und Pulsform "A" bedeutet die Injektion der doppelten Energie (0.554 kJ/mm). Es steht außer Frage, daß nun gravierendere Vorgänge ablaufen werden, insbesondere ist ein schnellerer Störfallablauf zu erwarten. Abb. 49 und 50 zeigen für diesen Fall charakteristische Temperaturverläufe, die sehr hohe Werte erreichen. Für den Puls "A" tritt nach 62 ms erstes Schmelzen auf, nach 80 ms ist der Brennstoff fast völlig flüssig, (vgl. Abb.51) und das Hüllrohr beginnt anzuschmelzen. Nach 120 ms tritt Kühlmittelsieden auf. Für den Puls "B" verläuft der Störfall wegen der besseren Wärmeabgabe nach außen zwar etwas milder, doch treten auch hier praktisch die gleichen Stabschäden auf.

Abb. 53 zeigt die axialen Schmelzfrontverläufe (Liquidus-Radien) zu ausgewählten Zeitpunkten für die Pulse "A" und "C". Für den postulierten Störfallverlauf zeigt sich eine besonders krasse Wirkung bei den Karbidstäben mit doppelter Leistung, während der mit gleicher Leistung wie der Oxidstab betriebene Karbidstab sich unproblematischer verhält. Für den Leistungspuls "B" treten die Schäden zwar wesentlich später auf, erreichen aber fast vergleichbare Ausmaße.

Abb. 54 vergleicht die zeitlichen Verläufe des Wärmestromes Brennstoff-Hülle; die durchweg höheren Werte für die Karbide führen zu höheren maximalen Hüllrohrtemperaturen und im Falle der Karbidstäbe mit den 0.554 kJ/mm-Pulsen zum Anschmelzen der Hüllrohre. Entsprechend schneller heizt sich auch das Kühlmittel auf. Die sehr hohen Wärmeströme für die 0.554 kJ/mm-Karbidstäbe sind neben dem höheren Leistungspuls auch auf den besseren Wärmedurchgang infolge Natriumbindung zurückzuführen. Die kritische Heizflächenbelastung wird - je nach Kühlmitteldurchsatz - früher oder später überschritten werden, was zu einer Be-

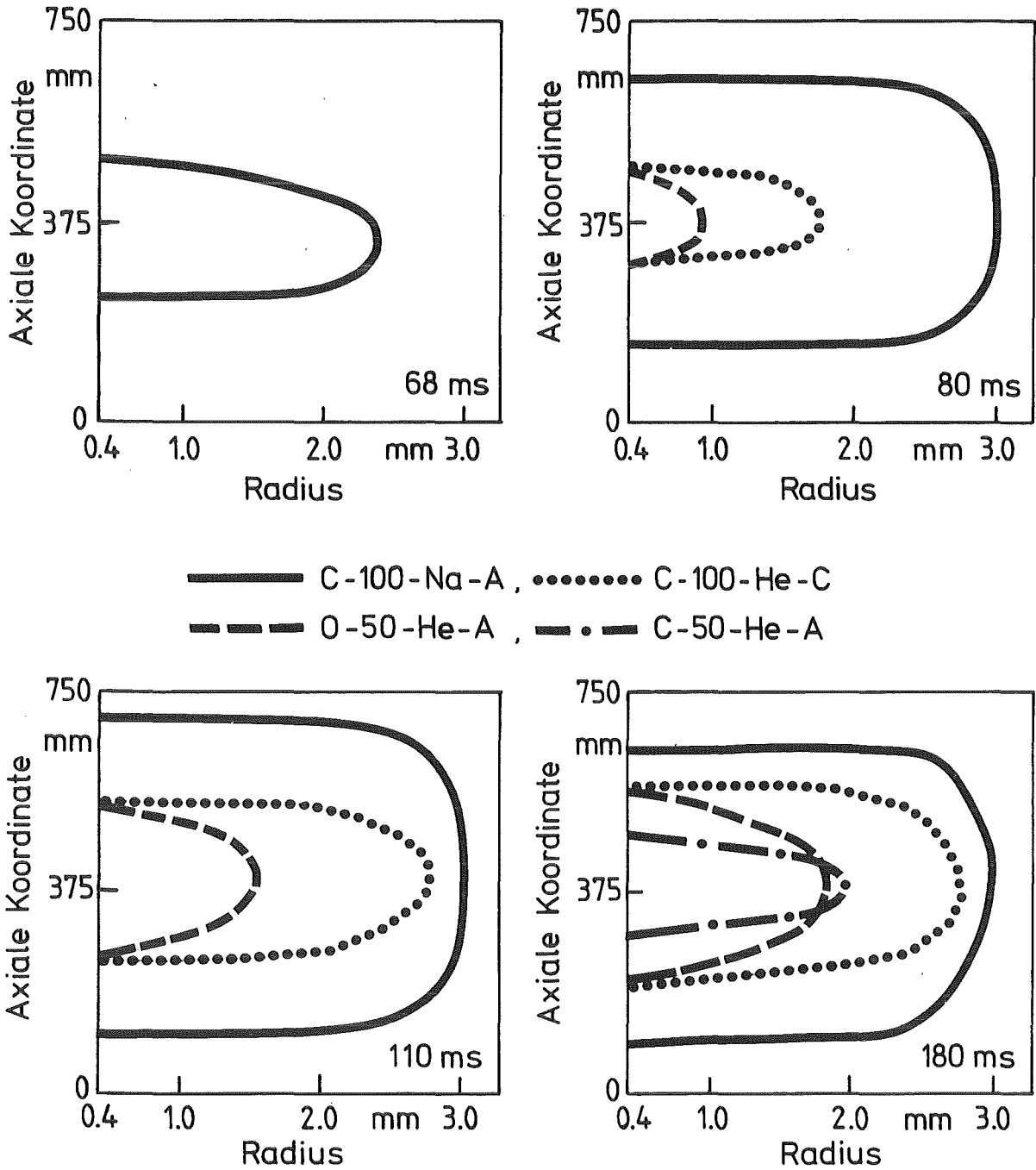


Abb. 53: Schmelzfrontverläufe Liquidus-Radius zu 4 ausgesuchten Zeitpunkten, Leistungspuls "A" und "C"

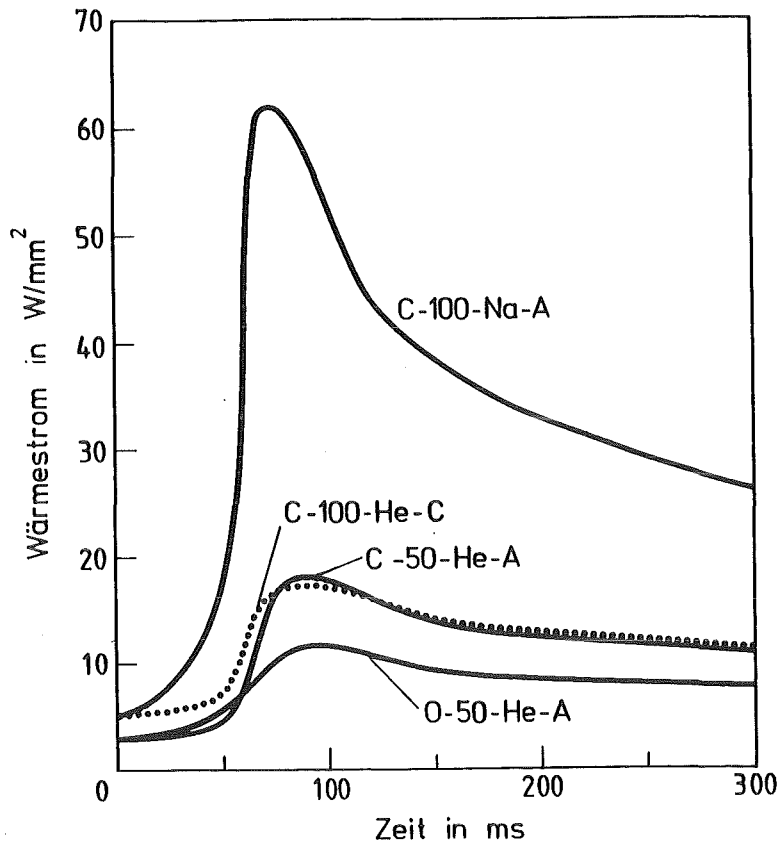


Abb. 54: Wärmestrom Brennstoff-Hülle für Puls "A" und "C"

schleunigung des Brennstabschmelzens führen wird infolge des sich drastisch verschlechternden Wärmeüberganges. Dies wurde in den Modellrechnungen nicht explizit berücksichtigt.

Im Falle eines Loss-of-Bond wären die Wärmeströme ohne Zweifel geringer, so daß Hüllrohrschmelzen und Kühlmittelsieden nicht oder erst viel später aufträten. Allerdings ist dann mit totalem Brennstoffschmelzen zu rechnen.

Abb. 55 zeigt die mittleren Enthalpien im Brennstoff als Funktion der Zeit, für den Karbidstab ergeben sich wie erwartet niedrigere Werte bei gleichen Randbedingungen.

Abb. 56 zeigt die unterschiedlichen axialen Verlängerungen der Brennstoffsäule am Beispiel der 50  $W/mm$ -Stäbe für den Puls "A"; wegen des größeren Abstandes der stationären Betriebstemperatur zur Schmelztemperatur und wegen der größeren angeschmolzenen Flächen ist die relative Verlängerung für Karbide

trotz der unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten etwa gleich, was auch zu vergleichbaren Reaktivitätseinflüssen führt.

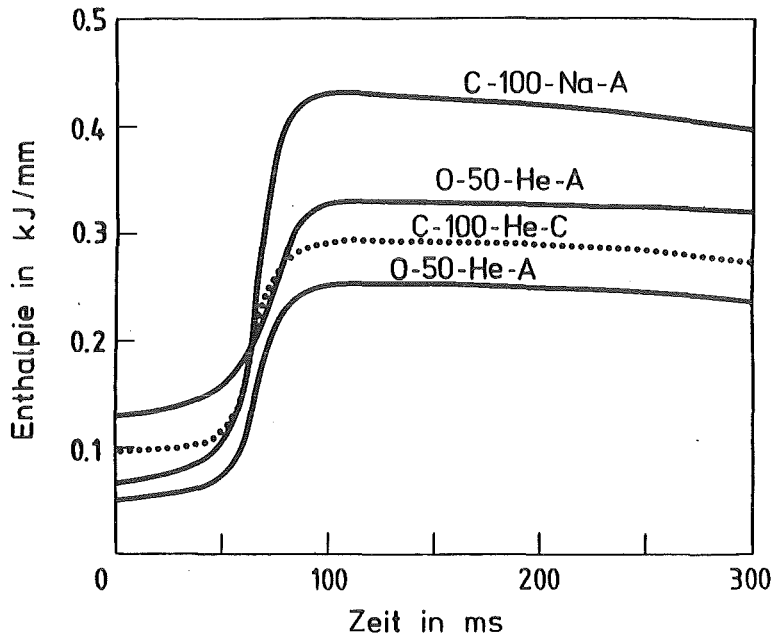


Abb. 55: Mittlere Enthalpie im Brennstoff für Pulse "A" und "C"

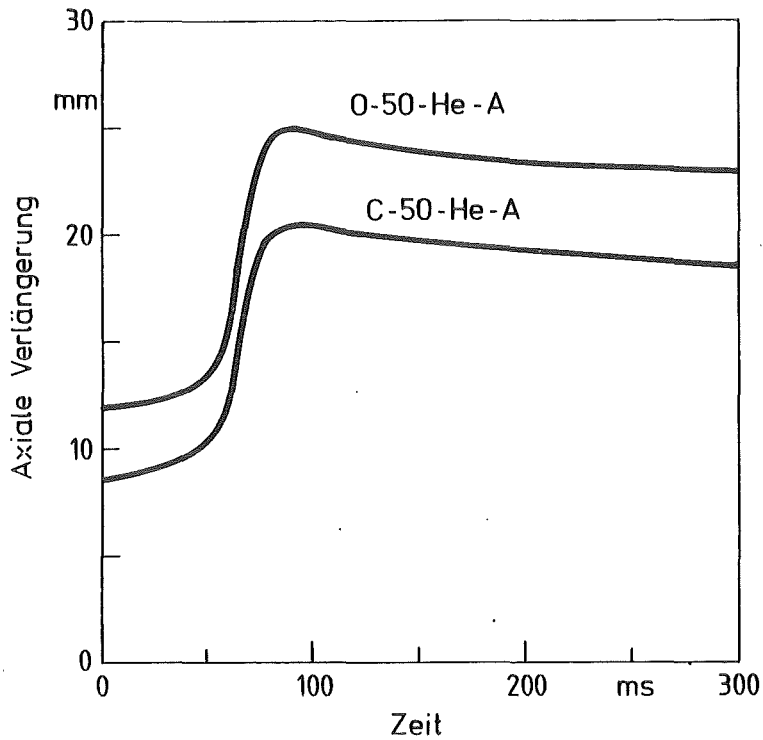


Abb.56: Integrale axiale Verlängerung der Brennstoffsäule während Modell-Puls "A".

Tabelle 11 und 12 zeigen als Übersicht über die behandelten Fälle einige wesentliche Ergebnisse. Am Rande sei erwähnt, daß neben den beschriebenen Schnellbrüterbedingungen auch ein Vergleich für Bestrahlungen in thermischem Fluß durchgeführt wurde, um heute übliche experimentelle Gegebenheiten (vgl. /147/) zu beschreiben. Hier zeigt sich ein interessantes Ergebnis: Wegen des flachen Temperaturverlaufes bei den Karbiden tritt bei Berücksichtigung von radialer Flußdepression der Einsatz des Schmelzens nicht im Zentrum, sondern am Rand des Stabes auf. Es ergibt sich ein Temperaturprofil mit außermittigem Maximum; erst nach Überschreiten des Leistungs-Peaks bildet sich das sonst gewohnte Profil aus.

	Höchstbelasteter Schnitt (PPP)				Stabende			
	O-50-He-A	C-50-He-A	C-100-He-C	C-100-Na-A	O-50-He-A	C-50-He-A	C-100-He-C	C-100-Na-A
Stablängenleistung (W/mm)	50	50	100	100	18.5	18.5	37	37
Brennstoffzentraltemperatur (°C)	2359	1042	1609	1329	1200	797	1155	1042
Brennstoffoberflächentemperatur (°C)	751	745	1082	759	675	681	944	824
Hüll-Innentemperatur (°C)	567	567	729	729	607	607	813	813
Hüll-Außentemperatur (°C)	505	505	613	613	585	585	773	773
Natrium-Temperatur (Einlaß 400°C)	490	490	582	582	579	579	760	760
Wärmeübergangszahl im Spalt (W/mm <sup>2</sup> K)	0.014	0.014	0.014	0.16 (input)	0.013	0.013	0.014	0.16 (input)

Tabelle 11: Stationäre Ergebnisse für den höchstbelasteten Schnitt (PPP) und das Stabende; Modell-Rechnungen.

Ereignis	Puls "A"			"C"	Puls "B"		
	O-50-He	C-50-He	C-100-Na	C-100-He	O-50-He	C-50-He	C-100-Na
Injizierte Energie (kJ/mm)	0.277	0.277	0.554	0.277	0.277	0.277	0.554
Zeit (ms)	130	130	130	130	260	260	260
Erstes Brennstoffschmelzen (Solidus-Linie)							
Zeit (ms)	62	74	62	66	124	152	124
Erstes Brennstoffschmelzen (Liquidus-Linie)							
Zeit (ms)	76	130	66	78	152	300	134
Maximale Schmelzfraktion (%)	47	53	90	82	42	37	87
Zeit (ms)	200	200	100	100	400	260	200
Maximaler Schmelzradius (Solidus-Linie) (mm)	2.42	2.52	3.13	3.01	2.3	2.54	3.01
Zeit (ms)	95	85	85	76	180	170	156
Maximaler Schmelzradius (Liquidus-Linie) (mm)	2.06	2.06	3.01	2.77	1.94	1.59	2.89
Zeit (ms)	300	200	78	100	560	400	152
Maximale axiale Schmelzfront- ausdehnung,							
obere Schmelzfront (mm)	600	550	750	650	600	550	750
untere Schmelzfront (mm)	150	200	50	150	150	200	50

Tabelle 12: Transiente Ergebnisse für den höchstbelasteten Schnitt (PPP).



Aus den angestellten Rechnungen können Schlüsse auf das unterschiedliche Verhalten von Oxid- und Karbidbrennstoff gezogen werden. Es ergeben sich kurzgefaßt folgende Ergebnisse:

- Wegen der niedrigeren stationären Betriebstemperaturen der Karbide, insbesondere bei Na-Bindung, ist der Abstand zum Schmelzpunkt deutlich größer. Brennstoffschmelzen tritt dadurch verzögert auf.
- Bei gleichen Stablängenleistungen und gleichen Leistungspulsen bleiben die Temperaturen des Karbidstabes deutlich unter denen des Oxidstabes.
- Selbst bei doppelter stationärer Leistung eines Karbidstabes mit Helium-Bindung (100 W/mm) ist bei gleicher injizierter Energie nicht mit wesentlich anderem Störfallverlauf als beim 50 W/mm-Oxidstab zu rechnen.
- Bei doppelter Stableistung und gleichem Leistungspuls, durch den die doppelte Energie injiziert wird, treten beim Karbidstab schnell große Schmelzbereiche und Stabschäden auf, auch wenn die Na-Bindung erhalten bleibt.
- Wegen der besseren Wärmeleitung und der geringeren spezifischen Wärme wird die erzeugte Leistung aus Karbidstäben schneller abgeführt als aus Oxiden; dies senkt die Brennstofftemperaturen, erhöht jedoch die Hüll- und Kühlmitteltemperaturen.
- Infolge des flacheren Temperaturgradienten bei Karbiden verläuft die Ausbreitung der Schmelzfront (Solidus-Linie) schneller als bei Oxiden, was bei gleicher Enthalpie erst zu einem späteren Zeitpunkt oder gar nicht zur vollständigen Verflüssigung führt (Liquidus-Linie).

- Je langsamer eine Transiente abläuft, desto höher sind die Vorteile des Karbid-Konzeptes, weil die kleineren Zeitkonstanten zu besserem Abtransport der Wärme führen.
  
- Die in der Literatur /84,146,148/ beschriebenen Ergebnisse, nach denen Karbidbrennstäbe in Transienten zumindest nicht schlechter abschneiden als Oxide, werden für gleiche Randbedingungen voll bestätigt. Als zusätzliche Sicherheitsreserve kann der zu Beginn des Kapitels diskutierte günstigere Einfluß des Doppler-Koeffizienten angeführt werden.

Auf der Basis der oben diskutierten Modell-Rechnungen zum Leistungsexkursions-Störfall kann keine unmittelbare Entscheidung für, aber auch nicht gegen das Karbidstab-Konzept getroffen werden, da das Verhalten nicht signifikant anders als beim Oxidstab berechnet wird. Eine endgültige, schlüssige Aussage kann deshalb nur unter Berücksichtigung der Neutronenphysik getroffen werden, die den Störfallablauf naturgemäß entscheidend beeinflusst.

## 5. Ausblick

In den vorangegangenen Kapiteln wurden die Möglichkeiten, aber auch die Problematik einer theoretischen Brennstabbeschreibung aufgezeigt. Es steht außer Frage, daß ohne die seit vielen Jahren international durchgeführte Brennstabstrukturanalyse eine ingenieurmäßige Auslegung von Brennstäben für Leistungsreaktoren und experimentelle Anordnungen nicht möglich gewesen wäre. Dennoch kann die Entwicklung der Modelltheorie noch längst nicht als abgeschlossen angesehen werden.

Offene Fragen existieren nach wie vor im Bereich der Materialdaten, insbesondere für hohe Temperaturen und nichtstationäre Belastungen, wobei der Mangel an Daten und physikalischem Verständnis besonders bei den fortgeschrittenen Brennstoffkonzepten deutlich wird. Hier wird die Brennstabmodelltheorie für absehbare Zeit vor allem die jeweils aktuellen Ergebnisse der Material- und Festkörperforschung und daraus abgeleitete Modelle zum Materialverhalten in die Rechenprogramme einbringen müssen. Während die methodische Entwicklung der etablierten Rechenprogramme praktisch abgeschlossen ist, müssen Detailprobleme wie

- Spaltgasverhalten
- Schwellen
- mechanische Wechselwirkung Brennstoff-Hüllrohr
- chemische Wechselwirkung Brennstoff-Hüllrohr
- Brennstabmechanik
- Brennstoffreißen, Fragmentierung und Relocation
- Druckaufbau in Schmelzzonen
- Materialtransport
- Versagenskriterien

unter spezieller Berücksichtigung schneller Last- und Zustandsänderungen (kurz: "transient") weiter verfolgt bzw. in Angriff

genommen werden. Hier liegen mittelfristig sehr gute Möglichkeiten für weitere Forschungs- und Entwicklungsarbeiten. Allerdings müssen zwei Probleme sehr deutlich herausgestellt werden:

- Die Kopplung transienter Modelle an Brennstabcodes, die im Einzelfall durchaus noch funktionieren mag, wird sich nicht beliebig ausweiten lassen; ein Brennstabcode, der von einer Schar ganz unterschiedlicher Satelliten-Programme umgeben ist, ist nach den bisherigen Erfahrungen nicht vorstellbar, selbst wenn Probleme, die aus dem Rechnerbetrieb resultieren (stark steigende Rechenzeiten, Speicher- und Plattenplatzbelegung) gelöst werden.
- Die Eichung von transienten Modellen am direkten Vergleich mit dem Experiment wird erheblich schwieriger werden. Die experimentelle Datenerfassung im Bereich hoher Abbrände, hoher Temperaturen und kurzer Zeiten ist problematisch; eine Ausdehnung der Messungen auf örtliche Effekte wird nur für wenige der angesprochenen Einflüsse möglich sein.

Die Brennstab-Modelltheorie wird diesen Problemen nicht ausweichen können. Für die Zukunft kommt es deshalb insbesondere auf klare und überschaubare Beschreibung der Materialphänomene an, wobei die wesentlichen Einflüsse herausgearbeitet werden und zulässige Vereinfachungen getroffen werden müssen. Dies wird u.U. zu Modellen führen, deren Anwendungsgrenzen enger gezogen sein werden als heute, mit den zwangsläufig auftretenden Problemen bei der "Umschaltung" auf andere Bereiche.

6. Literatur

- /1/ H.J. Teague, The Joint AEA/CEA/KfK Interpretation of the SCARABEE Programme, Nucl. Eng. Des., Vol 59, 1980, S.231ff
- /2/ K. Laßmann, Stand und Problematik der Brennstab-Struktur-analyse, KfK 2875, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Februar 1980
- /3/ D.R. Olander, Fundamental Aspects of Nuclear Reactor Fuel Elements, Energy Research and Development Administration, TID-26711-P1, USA 1976
- /4/ K. Laßmann, URANUS, A Computer Programme for the Thermal and Mechanical Analysis of the Fuel Rods in a Nuclear Reactor, Nucl. Eng. Des., Vol. 45 No. 2, S. 325-342, Februar 1978
- /5/ K. Laßmann, A. Moreno, The Light-Water-Reactor Version of the URANUS Integral Fuel-Rod Code, Atomkernenergie, Bd. 30, 1977, S. 207ff
- /6/ K. Laßmann, Zum Wärmedurchgang im Bereich zwischen Hülle und Brennstoff eines Brennstabes, Wärme- und Stoffübertragung, Vol. 12, 1979, S. 185ff
- /7/ C. E. Beyer, C. R. Hann, D. D. Lanning, F. E. Panisko, L. J. Parchen, GAPCON-THERMAL-2, A Computer Program for Calculating the Thermal Behavior of an Oxide Fuel Rod, BNWL - 1898, Battelle Pacific Northwest Laboratories, USA, 1975
- /8/ F. Depisch, H. Elbel, H. Kämpf, Die Behandlung des mechanischen und thermischen Verhaltens von Brennstäben in SATURN-1, 1. Int. Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, Berlin, 20.-24.9.1971
- /9/ J. van Vliet, E. De Meulemeester, General Description and Organisation of COMETHE III-J, Nucl. Eng. Des., Vol 56, 1980, S. 71ff

- /10/ M. C. Billone et al., LIFE-III Fuel-Element Performance Code, ANL-77-56, Argonne Nat. Laboratory, Argonne, Illinois, 1977
  
- /11/ H. Fabian, Beitrag zur mechanischen Auslegung zylindrischer Brennstäbe von Kernreaktoren unter Berücksichtigung der Mehrdimensionalität der Struktur auf der Basis der Finit-Element-Methode, KfK 2858, Kernforschungszentrum Karlsruhe, September 1979
  
- /12/ M. Ichikawa et al., FEMAXI-III: An Axisymmetric Finit Element Computer Code for the Analysis of Fuel Rod Performance, IAEA Specialists' Meeting on Fuel Element Performance Computer Modelling, Blackpool, 17.-21.3.1978, IAEA, Wien, Oktober 1980
  
- /13/ C. Ronchi, Guide to EUGES-MX, a Code for Swelling Calculation in MX-type Fuels, persönliche Mitteilung, 1980
  
- /14/ L. Väh, Current Status of Modelling Fission Gas Behaviour in the Karlsruhe Code LANGZEIT/KURZZEIT, KfK 2962, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Dezember 1980
  
- /15/ J. Rest, M. G. Seitz, S. M. Gehl, L. R. Kelman, Development and Experimental Verification of SST-GRASS, a Steady-State and Transient Fuel Response and Fission-Product Release Code, OECD-CSNI Meeting on the Behaviour of Water Reactor Fuel Elements under Accident Conditions, Spatind, Norwegen, 13.-16.9.76
  
- /15a/ J. Rest, S. M. Gehl, The Mechanistic Prediction of Fission-Gas Behavior During In-Cell Transient Heating Tests on LWR Fuel Using the GRASS-SST and FASTGRASS Computer Codes, Proc. 5th Int. Conf. SMiRT, Berlin, 1979
  
- /15b/ J. Rest, The Effect of Fission-Gas-Bubble Behavior on Micro-cracking and Fuel Response during Transient Heating of LWR Fuel, Proc. Reactor Safety Aspects of Fuel Behavior; vgl. /28/.

- /16/ K. Doetschmann, THESYS - Ein FORTRAN-Programm zur Berechnung der dreidimensionalen nominellen Temperaturverteilung in schnellen Reaktoren, KfK 1997, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Juli 1974
  
- /17/ R. Potter et al., SABRE-1, A Computer Programme for the Calculation of Three-Dimensional Flows in Rod Clusters, AEEW-R 1057, 1979
  
- /18/ K. Laßmann, An Iterative Model for Calculating the Crack Structure in Fuel Rod Design, 4. Int. Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, San Francisco, 15.-19.8.1977
  
- /19/ A. K. Miller, A. Taseonji, A Phenomenological Model for Iodine Stress Corrosion Cracking of Zircaloy, 6. Int. Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, Paris, 17.-21.3.1982
  
- /20/ H. Fabian, K. Laßmann, Zweidimensionale Untersuchungen zum Plastifizieren und Reißen von Brennstofftabletten, atomwirtschaft - atomtechnik, Jg. XXIII Nr. 11, Nov. 1978, S. 519-522
  
- /21/ L. Väth, T. Preußner, Zur Kopplung des transienten Spaltgascodes LANGZEIT/KURZZEIT an den integralen Brennstabcode URANUS. In Vorbereitung
  
- /22/ L. J. Siefken et al., FRAP-T5: A Computer Code for the Transient Analysis of Oxide Fuel Rods, EG&G Idaho, NUREG-CR-0840, TREE-1281, Juni 1979
  
- /23/ P.K. Mast, The Los Alamos Failure Model (LAFM): A Code for the Prediction of LMFBR Fuel Pin Failure, LA-7161-MS, Los Alamos Scientific Laboratories, USA, März 1978
  
- /24/ IAEA Specialists' Meeting on "Water Reactor Fuel Element Performance Computer Modelling", 13.-17.3.1978, Blackpool England, Nucl. Eng. Des., Vol 56, 1980, S. 1-296

- /25/ IAEA Specialists' Meeting on "Water Reactor Fuel Element Performance Computer Modelling", 16.-21.3.1980, Blackpool, England, IAEA, Wien, Oktober 1980
- /26/ IAEA Specialists' Meeting on "Water Reactor Fuel Element Performance Computer Modelling", 14.-19.3.1982, Preston, England, im Druck
- /27/ CSNI Specialists' Meeting on "Safety Aspects of Fuel Behaviour in Off-Normal and Accident Conditions", 1.-4.9.1980, Espoo, Finnland, OECD, Paris 1981
- /28/ ANS-ENS Topical Meeting on Reactor Safety Aspects of Fuel Behavior, 2.-6.8.1981, Sun Valley, Idaho, USA, American Nuclear Society, ISBN 0-89448-108-8, 2 Volumes
- /29/ T. Preußer, G. Kaltenthaler, E.K. Puska, Comparison of the Fuel Rod Performance Codes GAPCON-THERMAL-3 and URANUS-LWR-Version Applied to Halden Ramp Tests, Bericht rtda-68-82, Institut für Reaktortechnik, Technische Hochschule Darmstadt, 1982, Veröffentlichung in Vorbereitung
- /30/ C. Baigorria, T. Preußer, G. Böcking, Comparison of the Transient Fuel Element Computer Codes BACO and URANUS in Application to Typical ATUCHA-I Heavy Water Reactor Data, Bericht rtda-71-82, Institut für Reaktortechnik, Technische Hochschule Darmstadt, 1982, Veröffentlichung in Vorbereitung
- /31/ R. Schuster, W. Zimmerer, Darstellung der Stoffdaten des Systems MAPLIB in tabellarischer und graphischer Form, KfK-Ext. 8/77-1 und KfK-Ext. 8/78-3, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1977, 1978
- /32/ J. Leary, H. Kittle, Advanced LMFBR Fuels, Topical Meeting Proceedings, Tucson, Arizona, 10.-13.10.1977, ERDA 4455



- /33/ M. C. Billone, V. Z. Jankus, J. M. Kramer, C. I. Yang, Progress in Modeling Carbide and Nitride Fuel Performance in Advanced LMFBR's, Advanced LMFBR Fuels, Topical Meeting Proceedings, Tucson, Arizona, 10.-13.10.1977, ERDA 4455
- /34/ T. Preußer, Das Betriebshandbuch URANUS, Bericht rtda-49-80, Institut für Reaktortechnik, Technische Hochschule Darmstadt, 1980
- /35/ K. Laßmann, Die transiente Version des Rechenprogramms URANUS, atomwirtschaft-atomtechnik, Jg. XXII, Nr. 7, Oktober 1977
- /36/ K. Laßmann, Untersuchungen zu axialen Brennstoffbewegungen im Brennstoff vor Versagen, unveröffentlichter Bericht, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1979
- /37/ D. Marsal, Die numerische Lösung partieller Differentialgleichungen, BI-Wissenschaftsverlag, 1976
- /38/ E. E. M. Wilson, R. E. Nickell, Application of the Finite Element Method to Heat Conduction Analysis, Nucl. Eng. Des., Vol. 4, 1966, S. 276-286
- /39/ L. C. Wrobel, C. A. Brebbia, A Formulation of the Boundary Element Method For Axisymmetric Transient Heat Conduction, Int. Journ. Heat a. Mass Transfer, Vol.24, 1981, S.843-850
- /40/ K. Laßmann, T. Preußer, An Advanced Method for Transient Temperature Calculation in Fuel Element Structural Analysis. Zur Veröffentlichung eingereicht.
- /41/ H. Steiner, H. Elbel, Die Berechnung von Temperaturasymmetrien in gekapselten Brennstäben mit dem Rechenprogramm TEXDIF-P, KfK 2961, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Juni 1980

- /42/ L. E. Goodrich, Efficient Numerical Techniques for One-Dimensional Thermal Problems with Phase Change, Journ. Heat Mass Transfer, Vol. 21, 1978, S. 615-621
  
- /43/ J. R. Ockendon and W. R. Hodgkins, Moving Boundary Problems in Heat Flow and Diffusion, Oxford Univ. Press, Oxford, 1975
  
- /44/ T. R. Goodman, Application of Integral Methods to Transient Non Linear Heat Transfer, in: Advances in Heat Transfer, Vol. 1, S. 51-122
  
- /45/ B. Rubinsky, E. G. Cravahlo, A Finite Element Method for the Solution of One-Dimensional Phase Change Problems, Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 24, 1981, S. 1987-1989
  
- /46/ R. S. Gupta, D. Kumar, A Modified Variable Time Step Method for the One-Dimensional Stefan Problem, Comp. Methods in Applied Mechanics and Eng., Vol. 23, 1980, S. 101-109
  
- /47/ J. Kern, A Simple and Apparently Safe Solution to the Stefan Problem, Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 20, 1977, S. 5
  
- /48/ G. E. Bell, A Refinement of the Heat Balance Integral Method Applied to a Melting Problem, Int. J. Heat and Mass Transfer, Vol. 21, Nov. 1978, S. 1357-1362
  
- /49/ E. Kaufhold, Untersuchungen zum Schmelzverhalten des Brennstoffes unter transienter Belastung, Diplomarbeit D-218-16, Institut für Reaktortechnik, Technische Hochschule Darmstadt, 1979

- /50/ V. Voller, M. Cross, Accurate Solutions of Moving Boundary Problems Using the Enthalpy Method, Int. J. Heat Mass Transfer, Vol. 24, 1981, S. 545-556
- /51/ F. E. Dunn, G. J. Fischer, The SAS-2A LMFBR Accident-Analysis Computercode, ANL-8138, Argonne Nat. Laboratory, Argonne, Illinois, Oktober 1974
- /52/ G. Kaltenthaler, Untersuchungen zur transienten Version von URANUS, in: Untersuchungen zur Brennstab- u. Brennelement-mechanik, Untersuchungen zum Projekt Simulationsbestrahlungen, KfK-3325, KfK Karlsruhe, Juni 1982, S. 49-65
- /53/ W. Kramer, K. Schleisiek, D. Geithoff, L. Schmidt, A. Rahn, G. Vanmassenhove, A. Verwimp, In-pile Untersuchungen lokaler Kühlungsstörungen (Mol-7c), KfK-Nachrichten 3-4/78
- /54/ D. Vollath, K. Kummerer (Herausgeber), Proceedings of the Conference on Characterization and Quality Control of Nuclear Fuels, Karlsruhe, 13.-15.6.1978, North-Holland Publishing Company, Amsterdam
- /55/ D. Vollath, K. Kummerer (Herausgeber), Proceedings of the Second Conference on Characterization and Quality Control of Nuclear Fuel, Karlsruhe, 2.-5.7.1981, im Druck
- /56/ F. A. Nichols, Kinetics of Diffusional Motion of Pores in Solids, J. Nucl. Mat., Vol. 30, 1969, S. 143ff
- /57/ F. A. Nichols, Theory of Columnar Grain Growth and Central Void Formation in Oxide Fuel Rods, J. Nucl. Mat., Vol. 22, 1967, S. 214ff
- /58/ H. Stehle, H. Assmann, Thermal and In-Reactor Densification of  $UO_2$ : Mechanisms and Experimental Results, 4. Konferenz Structural Mechanics in Reactor Technology, San Francisco 15.-19.8.1977, Vol. C3/1. Nucl. Eng. Des., Vol 48, 1978 S. 49ff

- /59/ D. A. Collins, R. Hargreaves, Performance-Limiting Phenomena in Irradiated  $UO_2$ , Proc. British Nuclear Energy Society Conference on Nuclear Fuel Performance, London, Oktober 1973, paper 50
- /60/ S. B. Ainscough, B. W. Oldfield, J. O. Ware, Isothermal Grain Growth Kinetics in Sintered  $UO_2$ -Pellets, J. Nucl. Mat., Vol. 49, 1973/74, S. 117ff
- /61/ H. Blank, F. Caligara, M. Coquerelle, C. Ronchi, Modelling of Swelling and Fuel-Clad Contact Pressure in an "Real-Structure" Framework, IAEA Specialists' Meeting on Theoretical Modelling of LMFBR Fuel Pin Behaviour, Fontenay-aux-Roses, 28.5.-1.6.1979
- /62/ H. Többe, unveröffentlichter Bericht, Bensberg, 1975
- /63/ S. R. Mac Ewen, J. Hastings: A Model for In-Reactor Densification of  $UO_2$ , Philosophical Magazine, Vol. 31, 1975, S.135ff
- /64/ M. O. Marlowe, Predicting In-Reactor Densification Behavior of  $UO_2$ , ANS Transactions, Vol. 17, 1973, S. 166-169
- /65/ P. F. Sens, The Kinetics of Pore Movement in  $UO_2$ -Fuel Rods, J. Nucl. Mat., Vol. 43, 1972, S. 293ff
- /66/ H. Elbel, J. López-Jiménez, Ein Beitrag zur Analyse des thermischen Verhaltens von Schnellbrüter Brennstäben mit  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstoff, KfK 2216, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1975
- /67/ H. Elbel, J. López-Jiménez, On the Burnup Dependent Heat Transfer from Fuel to Cladding in FBR Fuel Rods, Nucl. Technology, Vol. 43, 1979, S. 88ff

- /68/ E. Duncombe, Analysis of Void Migration, Clad Collapse and Fuel Cracking in Bulk Oxide Fuel Rods (LWBR), F. A. Bettis Atomic Power Lab., WAPD-TM-794, 1976
- /69/ C. Ronchi, C. Sari, Swelling Analysis of Highly Rated MX-Type LMFBR Fuels, Restructuring and Porosity Behaviour, J. Nucl. Mat., Vol. 58, 1975, S. 140ff
- /70/ H. Hoffmann, Analyse der Leervolumenverteilung in oxidischem Kernbrennstoff während der Bestrahlung, Reaktortagung 1973, S. 405ff, Deutsches Atomforum, Bonn 1973
- /71/ W. Dienst, I. Müller-Lyda, H. Zimmermann, Swelling, densification and creep of oxide and carbide fuels under irradiation, Int. Conf. on Fast Breeder Reactor Fuel Performance, Monterey, California, 5.-8. März 1979, American Nuclear Society, 1979
- /72/ MATRO-Version 09: A Handbook of Materials Properties for Use in the Analysis of LWR Fuel Rod Behavior, Energy Research and Development Administration, Idaho, USA, 1976, TREE-NUREG 1005
- /73/ W. Dienst, Erzeugung, Nachweis und Ausheilung von Kristallgitter-Punktdefekten durch Neutronenbestrahlung, KfK-1215, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1970
- /74/ J. López-Jiménez, H. Elbel, Modelltheoretische Analyse der Struktur und des thermischen Verhaltens des  $UO_2$ - $PuO_2$ -Brennstoffes im Bestrahlungsexperiment FR2 - Kapselversuchsgruppe 5a, KfK 2477, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1977
- /75/ H. Aßmann, Porengrößenverteilung zur Optimierung des Dimensionsverhaltens von  $UO_2$ -Tabletten, J. Nucl. Mat., Vol. 81, 1978, S. 93-99
- /76/ F. A. Nichols, Pore Migration in Ceramic Fuel Elements, J. Nucl. Mat., Vol. 27, 1968, S. 137ff

- /77/ C. F. Clement, The Movement of Lenticular Pores in  $UO_2$  Nuclear Fuel Elements, J. Nucl. Mat., Vol. 68, 1977, S. 63-68
- /78/ K. Kummerer, P. Weimar, Brennstab-Bestrahlungsversuch mit integrierter Variation der Brennstoffdichte, KfK 1886, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1975
- /79/ T. Preußer, Die Modelle zum Werkstoffverhalten im URANUS-Rechenprogramm, in: Jahresbericht der Arbeitsgruppe Brennstab- und Brennelementmechanik des Instituts für Reaktortechnik der Technischen Hochschule Darmstadt, KfK-2690, Kernforschungszentrum Karlsruhe, September 1978
- /80/ C. S. Olsen,  $UO_2$  Pore Migration and Grain Growth Kinetics, 5. Int. Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, Vol. C, Berlin, 13.-17.8.1979
- /81/ E. Gebhardt, F. Thümmeler, H. D. Seghezzi, Reaktorwerkstoffe, Teil 2: Keramische und pulvermetallurgische Werkstoffe, B. G. Teubner Verlag, Stuttgart 1969
- /82/ J. L. Routbort, R. N. Singh, Elastic, Diffusional and Mechanical Properties of Carbide and Nitride Nuclear Fuels - a Review, J. Nucl. Mat., Vol. 58, 1975, S. 78-114
- /83/ K. Kummerer, Die Bedeutung von Karbidbrennstoffen für Schnelle Brüter, in: Karbidische Kernbrennstoffe für Schnelle Brutreaktoren, KfK-Bericht 1111, KfK Karlsruhe, Oktober 1969
- /84/ L. Mync, C. H. Bowers, D. R. Ferguson, Analysis of Core Disruptive Accidents in Carbide-Fueled LMFBRs, Topical Meeting on Advanced LMFBR Fuels, Tucson, Arizona, USA, 10.-13.10.1977, ERDA 4455

- /85/ T. Preußer, Modeling of Carbide Fuel Rods, Nuclear Technology, Vol. 57 Nr. 3, S. 343 - 371, Juni 1982
- /86/ T. Preußer, The Carbide Version of the Integral Fuel Rod Code URANUS, 6. Int. Conference on Structural Mechanics in Reactor Technology, Paris 17.-21.8.1981
- /87/ H. Steinkopff, Urancarbide, in: Scheibe, Steinkopff, Quäck, Hüttig, Werkstoffe der Kerntechnik, Teil 1. VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin, 1963
- /88/ G. M. Nickerson, W. E. Kastenbergl, Preliminary Assesments of Carbide Fuel Pins during Mild Overpower Transients in LMFBRs, Nucl. Eng. Des., Vol. 36, 1976, S. 209-233
- /89/ A. Padel, Ch. de Novion, Constantes elastiques des carbures, nitrures et oxydes d'uranium et de plutonium, J. Nucl. Mat., Vol. 33, 1969, S. 40-51
- /90/ J. R. Matthews, Mechanical Properties and Diffusion Data for Carbide and Oxide Fuels, AERE - M 2643, Harwell, Oxfordshire, September 1974
- /91/ H. Steiner, Das Materialverhalten der karbidischen Brennstoffe, unveröffentlichter Bericht, KfK Karlsruhe, 1975
- /92/ H. Hoffmann, Thermische Ausdehnung, spezifische Wärme, Zustandsgleichung, in: Karbidische Kernbrennstoffe für Schnelle Brutreaktoren, KfK-1111, KfK Karlsruhe, Okt. 1969
- /93/ D. Freund, H. Elbel, H. Steiner, Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der UC- und (U,Pu)C-Brennstäbe der Versuchsgruppen Mol-11/K1 und Mol-11/K2, KfK-2268, KfK Karlsruhe, Juni 1976
- /94/ F. Caligara, TPROF-A: A Computer Code for Analysing the Behaviour of the Advanced Fuels, persönliche Mitteilung, 1978

- /95/ H. Elbel, H. Steiner, Analyse des Karbid-Bestrahlungsversuchs Mol-11/K1-1, unveröffentlichter Bericht, KfK Karlsruhe, 1975
- /96/ F. Caligara, Angaben zum Experiment GOCAR-4, persönl. Mitteilung, 1979
- /97/ T. Preußer, Analysis of the Carbide Fuel Element Experiment GOCAR-4 Using the URANUS Fuel Rod Code, Bericht rtda-58-81, Institut für Reaktortechnik, Technische Hochschule Darmstadt, Darmstadt 1981
- /98/ H. E. Schmidt, Wärmeleitfähigkeit, in: Karbidische Kernbrennstoffe für Schnelle Brutreaktoren, KfK-1111, KfK Karlsruhe, Oktober 1969
- /99/ L. Steinbock, Das Brennstabauslegungs- und Überwachungssystem MERKUR, unveröffentlichter Bericht, KfK Karlsruhe, 1974
- /100/ H. Steiner, Der Wärmedurchgang in Karbid-Brennstäben mit mittleren bis großen Fertigungsspalten beim Anfahren, KfK-2472, KfK Karlsruhe, Juni 1977
- /101/ H. Steiner, P. Weimar, Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der (U,Pu)C-Prüflinge der Kapselversuchsgruppen 6a und 6c, KfK-2577, KfK Karlsruhe, März 1978
- /102/ L. S. H. Chow, M. S. Billone, Fuel-Cladding Gap Conductance Model for LMFBR Fuel Elements, ANS-Transactions, Vol. 23, 1976, S. 170-171
- /103/ G. M. Nickerson, R. J. Bergeron, E. R. Siegmann, Safety Aspects of Carbide Irradiations in FTR Driver Positions, Topical Meeting on Advanced LMFBR Fuels, Tucson, Arizona, 10.-13.10.1977, ERDA 4455



- /104/ C. Grando, M. Montgomery, A. Strasser, Unrestrained Swelling and Fission-Gas-Release Experiments of Fast Reactor Fuels, ANS-Transactions, Vol. 14/1, 1971, Seite 37
- /105/ H. J. Matzke, C. Ronchi, Spaltgasverhalten in theoretisch dichtem Brennstoff, in: Brennstabmodelltheorie - Modelle und Materialdaten, KfK-1400, KfK Karlsruhe, Oktober 1971
- /106/ H. Michailoff, Fundamental Results on Irradiated Carbides: Fission Product Release, Fuel Swelling and Evolution of Composition, ANS-Transactions, Vol. 19, 1974, S. 89-90
- /107/ H. Steiner, D. Freund, O. Jacobi, P. Weimar, Auslegung, Bestrahlung und Nachuntersuchung der Na-gebundenen (U,Pu)C-Brennstäbe der Versuchsgruppen Mol 15, KfK-2451, KfK Karlsruhe, April 1977
- /108/ A. Strasser, M. Montgomery, R. Powers, Effects of Irradiation on U,Pu-Carbide Fuel Rods to 65000 MWD/to Burnup, ANS-Transactions, Vol. 14/3, 1971, S. 40
- /109/ R. Lallemant, H. Michailoff, J. Ravier, Carbide Fuel Elements for Fast Reactors - Research and Development Program, ANS-Transactions, Vol. 20, 1975, S. 296-298
- /110/ H. Zimmermann, Schwellen durch feste Spaltprodukte, in: Brennstabmodelltheorie - Modelle und Materialdaten, KfK-1400, KfK Karlsruhe, Oktober 1971
- /111/ W. Dienst, Das Verhalten unter Neutronenbestrahlung, in: Karbidische Kernbrennstoffe für Schnelle Brutreaktoren, KfK-1111, KfK Karlsruhe, Oktober 1969
- /112/ W. Dienst, Probleme der mechanischen und chemischen Wechselwirkung Brennstoff/Hülle in Schnellbrüter-Brennstäben, gehaltener Vortrag, Werkstoff-Seminar des IMF, KfK Karlsruhe, November 1979

- /113/ B. Ilschner, Hochtemperatur-Plastizität, Springer-Verlag, Berlin, 1973
- /114/ H. J. Hedger, Fast Reactor Fuels, in: Journal of the Institution of Nuclear Engineers, Vol. 17/2, London, 1976, S. 39-44
- /115/ C. Ronchi, Physical Processes and Mechanisms Related to Fission Gas Swelling in MX-Type Nuclear Fuels, J. Nucl. Mat., Vol. 84, 1979, S. 55 ff
- /116/ C. Ronchi, I. L. F. Ray, H. Thiele, J. van der Laar, Swelling Analysis of Highly Rated MX-type LMFBR Fuels, J. Nucl. Mat., Vol. 74, 1978, S. 193 - 211
- /117/ P. Prajoto, A. R. Wazzan, D. Okrent, Computer Modelling of Steady State Fission Gas Behaviour in Carbide Fuels, Nucl. Eng. Des., Vol. 48, 1978, S. 461-495
- /118/ H. Kleykamp, Radial Distribution of Bonded Fission Gas in Mixed Carbide Fuel Pins, in: Proceedings of the Workshop on Fission Gas Behaviour in Nuclear Fuels, EUR 6600 EN, Europäisches Institut für Transurane, Karlsruhe, 1979
- /119/ M. Coquerelle, C. T. Walker, Fission Gas Release and Microscopic Swelling in Highly Rated MX-Type Fuels, in: Proceedings of the Workshop on Fission Gas Behaviour in Nuclear Fuels, EUR 6600 EN, Europäisches Institut für Transurane, Karlsruhe, 1979
- /120/ H. G. Bogensberger, C. Ronchi, Effects due to Fission Gas During Unprotected Overpower Transients in a Liquid Metal Fast Breeder Reactor, Nucl. Techn., Vol. 29, April 1976, Seite 73 ff

- /121/ J. R. Matthews, M. H. Wood, Modelling the Transient Behaviour of Fission Gas, J. Nucl. Mat., Vol. 84, 1979, S. 125-136
- /122/ W. Batey, The Behaviour of Highly Rated Large Diameter Mixed Carbide Pins Irradiated in DFR, in: Proceedings of the Workshop on Fission Gas Behaviour in Nuclear Fuels, EUR-6600-EN, Europäisches Institut für Transurane, Karlsruhe, 1979
- /123/ A. Boltax, U. P. Nayak, R. J. Skalka, A. Biancheria, Mixed Carbide Fuel-Pin Performance Analysis, ANS - Transactions, Vol. 19, 1974, S. 97-99
- /124/ R. Fazzolare, Gas-Cooled Fast Breeder Reactor Designs With Advanced Fuel and Cladding, Nucl. Eng. Des., Vol. 40, 1977, S. 191-201
- /125/ H. Zimmermann, Spaltgasverhalten in Karbidbrennstäben, in: 3. Vierteljahresbericht 1976 des PSB, KfK-1276/3, Dezember 1976
- /126/ T. W. Latimer, F. L. Brown, L. A. Neimark, Performance in EBR-II of Carbide Fuel Elements Irradiated to 7% Burnup, ANS-Transactions, Vol. 12, 1969, S. 87-88
- /127/ T. W. Latimer, J. O. Barner, J. F. Kerrisk, J. L. Green, Steady-State Irradiation Behavior of Helium-Bonded Uranium-Plutonium Carbide, ANS-Transactions, Vol. 19, 1974, S. 91
- /128/ H. Steiner, Zwischenbericht zum Bestrahlungsexperiment Mol-11/K2-3, in: 1. Vierteljahresbericht 1977 des PSB, KfK-1277/1, S. 112-135, KfK Karlsruhe, Juni 1977
- /129/ T. Preußner, Ergebnisse der URANUS-Rechnungen zu den Experimenten DN1DP1, DN1DP2 und DN1DP3, Bericht rtda-69-81, Institut für Reaktortechnik, Technische Hochschule, Darmstadt, 1981

- /130/ J. Aberle et al., Zielsetzung, Spezifikation und Vorbereitung der Mol 7c-Sicherheitsexperimente, unveröffentlichter Bericht, KfK Karlsruhe, 1978
- /131/ S. Jacobi, W. Kramer, K. Schleisiek, Zur Frage der Pin-zu-Pin-Schadenspropagation in natriumgekühlten Schnellen Brutreaktoren, KfK-2047, Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1975
- /132/ J. Aberle, W. Kramer, A. Rahn, K. Schleisiek, L. Schmidt, Durchführung und Auswertung des ersten Mol-7c-Sicherheitsexperimentes, unveröffentlichter Bericht, KfK Karlsruhe, 1978
- /133/ J. Aberle, W. Kramer, K. Schleisiek, A. Rahn, Durchführung und Auswertung des zweiten Mol-7c-Sicherheitsexperimentes, unveröffentlichter Bericht, KfK Karlsruhe, 1979
- /134/ K. Schleisiek, G. Ochs, H. K. Römer, NSK-Vorversuche mit der Blockade Mol-7c/1, unveröffentlichter Bericht, KfK Karlsruhe, 1977
- /135/ Ch. Homann, Analyse der stationären dreidimensionalen Temperatur- und Geschwindigkeitsfelder der 37-Stab-Anordnung Mol-7c/1 mit SABRE, unveröffentlichter Bericht, KfK-Karlsruhe, 1981
- /136/ G. Bönisch, W. Kramer, Kühlmittel- und Hüllrohrtemperaturen beim Experiment Mol-7c, unveröffentlichter Bericht, KfK Karlsruhe, 1979
- /137/ Ch. Homann, W. Kramer, K. Schleisiek, Temperature Increase and Boiling Behaviour in Porous Blockages in LMFBR Fuel Elements, Ninth Meeting Liquid Metal Boiling Working Group, Rom, 4.-6.6.1980
- /138/ M. Bottoni, persönliche Mitteilung, 2.2.1982

- /139/ W. Kramer, K. Laßmann, T. Preußner, Theoretische Untersuchungen zum Zentralkanal beim Experiment Mol 7c/1 mit dem URANUS-Rechenprogramm, unveröffentlichter Bericht, KfK Karlsruhe, 1980
- /140/ G. Karsten, W. Hellriegel, G. Weih, A Systematic Energy Analysis on the Basis of Structural Phenomena of a Coolant Blockage Experiment, International Meeting on Fast Reactor Safety Technology, Seattle, 19.-23.8.1979, American Nuclear Society, 1979, S. 1069-78
- /141/ T. Preußner, G. Böcking, Interpretation der Experimente Mol-7c/1 und Mol-7c/2 mit dem integralen Brennstabcode URANUS, Bericht rtda-70-82, Institut für Reaktortechnik, Technische Hochschule Darmstadt, 1982. Veröffentlichung in Vorbereitung
- /142/ M. Coquerelle, Report V on Swelling of MX-type Fuels, persönliche Mitteilung, 1977
- /143/ H. Blank, Plutonium Fuels and Actinide Research, persönliche Mitteilung, 1979
- /144/ H. Blank, Correlation Between Properties and Irradiation Behavior for Carbide, Carbonitride and Nitride Fuels, Topical Meeting on Advanced LMFBR Fuels, Tucson, Arizona, 10.-13.10.1977, ERDA 4455
- /145/ J. W. Bennet et al., Advanced/Alternate Breeder Fuels Testing in the U. S., Topical Meeting Proceedings, Intern. Conf. on Fast Breeder Reactor Fuel Performance, Monterey, California, 5.-8. März 1979, American Nuclear Society, 1979

- /146/ H. C. Tsai, L. A. Neimark, D. L. Johnson, Behavior of Advanced Carbide Fuel during Transient Overpower Operation, Topical Meeting Proceedings, Intern. Conf. on Fast Breeder Reactor Fuel Performance, Monterey, California, 5.-8. März 1979, American Nuclear Society, 1979
- /147/ D. Struwe et al., Fuel Pin Behavior in Power Burst Experiments Performed in CABRI, Proceedings ANS/ENS Topical Meeting on Reactor Safety Aspects of Fuel Behavior, Sun Valley, USA, 2.-6.8.1981
- /148/ H. Plitz, The GfK Experimental Approach to Carbide Fuel Element Licensing, Topical Meeting on Advanced LMFBR Fuels, Tucson, Arizona, 10.-13.10.1977, ERDA 4455